

Einfluß der Gasverteilerkonstruktion auf Stoffaustausch- und Reaktionsverhalten flacher Wirbelschichten

Der Technischen Fakultät
der Universität Erlangen-Nürnberg
zur Erlangung des Grades
Doktor-Ingenieur

vorgelegt von

Werner Bauer

Erlangen, 1980

EINFLUSS DER GASVERTEILERKONSTRUKTION
AUF STOFFAUSTAUSCH- UND REAKTIONSVERHALTEN
FLACHER WIRBELSCHICHTEN

Der Technischen Fakultät
der Universität Erlangen-Nürnberg
zur Erlangung des Grades
D o k t o r - I n g e n i e u r



vorgelegt
von
Werner Bauer

Erlangen, 1980



Als Dissertation genehmigt von
der Technischen Fakultät
der Universität Erlangen-Nürnberg

Tag der Einreichung: 8. Mai 1980

Tag der Promotion: 23. Juni 1980

Dekan: Prof. Dr.-Ing. H. Niemann

Berichterstatter: Priv.-Doz. Dr.-Ing. habil. J. Werther

Prof. Dr.-Ing. G. Emig

Die vorliegende Arbeit ist am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Erlangen-Nürnberg entstanden.

Mein besonderer Dank gilt dem Lehrstuhlinhaber, Herrn Professor Dr.-Ing. O. Molerus, der immer wieder Mittel und Wege fand, die Durchführung der Arbeit zu ermöglichen und mit kritischem Verständnis zur Lösung schwieriger Probleme beitrug.

Herrn Priv.-Doz. Dr.-Ing. habil. J. Werther danke ich für die Aufgabenstellung und ganz besonders dafür, daß er nach seinem Wechsel von der Hochschule in die Industrie die Betreuung der Arbeit kontinuierlich weiterführte und mir mit Rat und Tat zur Seite stand.

Herrn Professor Dr.-Ing. G. Emig möchte ich für die stete Hilfe in Fragen der Reaktionsdurchführung und für die Übernahme des Korreferates danken.

Die Herren Dipl.-Ing. Roth, Fritsch, Kurtin und Bellgardt haben im Rahmen ihrer Diplomarbeiten, die Herren Latzel, Müller, Sitzmann und Hesse im Rahmen ihrer Studienarbeiten Wesentliches zu dieser Arbeit beigetragen. Auch ihnen sei an dieser Stelle herzlich gedankt.

Nicht zuletzt gilt mein Dank auch den Mitarbeitern des Lehrstuhls für Mechanische Verfahrenstechnik, insbesondere Herrn Fink und Herrn Schneider für die Unterstützung bei Entwicklung und Bau der Meßapparaturen, Frau Gleim, Frä. Scheffler und Herrn Walther für ihre Hilfe bei der Fertigstellung des Manuskriptes.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Stand des Wissens auf dem Gebiet der mathematischen Beschreibung von Wirbelschichtreaktoren	4
2.1 Das Blasenmodell von Kunii und Levenspiel	5
2.2 Das Zweiphasenmodell von May	8
2.3 Das erweiterte Zweiphasenmodell von Werther	11
2.4 Beschreibung des Einflusses der Gasverteilung durch Behie und Bergougnou	17
3. Mathematische Beschreibung eines Wirbelschichtreaktors unter Berücksichtigung der Gasverteilung	19
3.1 Modellierungskonzept	19
3.2 Berechnung des Volumenanteils des Gases der feststofffreien Phase	20
3.3 Berechnung der spezifischen Stoffaustauschfläche zwischen feststofffreier Phase und Suspensionsphase	27
3.4 Bilanzierung am differentiellen Höhenelement	33
4. Untersuchung des Stoffaustauschverhaltens einer Wirbelschicht mit Hilfe von Verweilzeitverteilungsmessungen	38
4.1 Lösung des Differentialgleichungssystems für Verweilzeitverteilungsversuche	39
4.2 Meß- und Auswertungskonzept	40
4.3 Versuchsaufbau	42
4.3.1 Anlage	43
4.3.2 Erzeugung des Eingangssignals für Verweilzeitverteilungsmessungen	48
4.3.3 Probenahme und Bestimmung der Tracergaskonzentration	48

4.4	Eichmessungen	52
4.4.1	Dichtheit des Vakuumsystems	53
4.4.2	Angabe absoluter Konzentrationen	53
4.4.3	Entmischung im Probenahmesystem	53
4.4.4	Einfluß des Druckes auf die Probenahme	54
4.4.5	Eigenverweilzeit der Einzelkapillaren	55
4.4.6	Symmetrie der Tracergassignale über dem Wirbelschichtquerschnitt	56
4.5	Ergebnisse der Verweilzeitverteilungsmessungen	59
5.	Nachprüfung der aus Verweilzeitverteilungsmessungen gewonnenen Ergebnisse durch eine Modellreaktion im Wirbelschichtreaktor	63
5.1	Meß- und Auswertungskonzept	63
5.2	Versuchsaufbau	64
5.2.1	Wirbelschichtreaktor	65
5.2.2	Festbettreaktor	67
5.2.3	Ozonerzeugung	68
5.2.4	Probenahme und Analyse	68
5.3	Versuchsdurchführung	69
5.3.1	Eichung des Ozonanalysators	69
5.3.2	Bestimmung der Reaktionskinetik im Festbettreaktor	70
5.3.2.1	Reaktionsordnung	70
5.3.2.2	Reaktionsgeschwindigkeitskonstante	71
5.3.2.3	Aktivierungsenergie der Ozonabbaureaktion	72
5.3.2.4	Desaktivierung des Katalysators	73
5.3.3	Eichung des Probenahmesystems	74
5.3.4	Umsatzbestimmung am Wirbelschichtreaktor	77
5.4	Ergebnisse der Reaktionsversuche in der Wirbelschicht	77
5.4.1	Einfluß von Reaktionsgeschwindigkeit und Anström- geschwindigkeit	77
5.4.2	Einfluß des Reaktordurchmessers	78
5.4.3	Einfluß der Gasverteilerkonstruktion	79
5.4.4	Zusammenstellung der Ergebnisse	80

6.	Zusammenfassung	80
7.	Verzeichnis der Formelzeichen	83
8.	Literaturverzeichnis	92
9.	Anhang	96
9.1	Stoffaustausch in der Bodenzone nach Behie und Bergougnou	96
9.2	Lösung des Differentialgleichungssystems für eine Stufenfunktion als Eingangssignal	98
9.3	Lösung des Differentialgleichungssystems für einen Dirac-Impuls als Eingangssignal	100
9.4	Fehler bei Verwendung der Näherungslösung für die Varianz des Antwortsignals	102
9.5	Charakterisierung des Versuchsgutes	104
9.6	Berechnung der Kapillarverteilung des Probenahmesystems für Verweilzeitverteilungsmessungen im Wirbelschichtreaktor	106
9.7	Abschätzung des Diffusionseinflusses auf die Bestimmung der reaktionskinetischen Parameter im Festbettreaktor	108
9.8	Katalysatorherstellung und Abriebsversuch	112
9.9	Ergebnisse der Verweilzeitverteilungsmessungen	114

1. Einleitung

Das Verfahrensprinzip der Fluidisation besteht darin, daß eine Schüttung feinkörnigen Feststoffs durch einen aufwärts gerichteten Gasstrom in einen flüssigkeitsähnlichen Wirbelzustand versetzt wird. Seitdem das von Fritz Winkler in der BASF entwickelte Verfahren zur Kohlevergasung in einer Wirbelschicht 1922 zum Patent angemeldet wurde, hat sich dieses Verfahrensprinzip einen breiten Anwendungsbereich auf dem Gebiet physikalischer und chemischer Prozesse erschlossen. Literaturübersichten zeigen die Vielfalt der durchgeführten Prozesse in der anorganischen und organischen Chemie [1, 4], in Umweltschutz und Energietechnik [2, 35, 36] und in der Pharmazie [3]. Das Spektrum der Anwendungsfälle reicht von reinen Trocknungsvorgängen über Gasphasenreaktionen mit dem Wirbelgut als Wärmeträger und Gas/Feststoffreaktionen bis zu heterogenen katalytischen Reaktionen. Die Vorteile der Wirbelschicht - Isothermie der Schicht, Zu- und Abfuhr großer Wärmemengen über in die Wirbelschicht eintauchende Wärmeaustauschflächen, einfaches Abziehen und externes Regenerieren des verbrauchten Katalysators - erklären die stetig wachsende Zunahme der Wirbelschichtanwendungen. Gegenüber dem Festbettreaktor ist jedoch der Aufwand für die Maßstabsvergrößerung eines Wirbelschichtverfahrens vergleichsweise groß, denn in Labor-, Pilot- und Großanlage müssen jeweils immer wieder die günstigsten Betriebsbedingungen empirisch ermittelt werden. Dies ist eine zeitintensive, teure und riskante Vorgehensweise, die keineswegs garantiert, daß sich die in einer Entwicklungsstufe gefundenen Optimalwerte in der nächsthöheren noch realisieren lassen [5].

Die Entwicklung geeigneter mathematischer Modelle für die Optimierung von Wirbelschichtreaktoren kann dieses generelle Handikap im Vergleich etwa zum Festbettreaktor beseitigen. Ein derartiges Modell hat zwei wesentliche Forderungen zu erfüllen [6]:

1. Das Modell darf keine willkürlichen Anpassungsparameter enthalten, d.h. bei bekannter Reaktionskinetik muß das Betriebsverhalten des Reaktors vorausberechenbar sein.
2. Das Modell muß für Scale-up-Rechnungen verwendbar sein, d.h. es muß den Einfluß der Wirbelschichtgeometrie auf das Betriebsverhalten des Reaktors berücksichtigen.

Besonders im Hinblick auf die letztere Forderung entwickelte Werther [7] in den letzten Jahren ein Modell zur Beschreibung heterogen katalytischer Reaktionen in Wirbelschichten, auf das in Kapitel 2 noch näher eingegangen wird. In diesem Modell ist der Einfluß, den die Konstruktion des Gasverteilerbodens auf die Strömungsmechanik und damit auf das Stoffaustausch- und Reaktionsverhalten der Wirbelschicht ausübt, noch nicht berücksichtigt.

Labor-
apparaturen

halbtechnische und technische

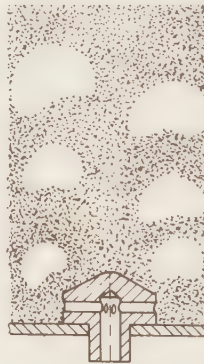
Wirbelschichten



poröse Platte



Lochboden



Düsenboden



Glockenboden

Abb. 1.1: In Wirbelschichtreaktoren eingesetzte Gasverteiler

In Laborapparaturen werden als Gasverteiler poröse Platten bzw. Fritten eingesetzt (Abb. 1.1). In halbtechnischen und technischen Anlagen finden dagegen spezielle Gasverteiler, wie Lochboden, Düsenboden und Glockenboden, Verwendung. Die Betrachtung des Scale-up-Einflusses ist also mit der Betrachtung des Gasverteilereinflusses eng verbunden. Dabei wird sehr häufig die Ansicht vertreten, die poröse Platte sei der ideale Anströmboden für Reaktoren, weil sie offensichtlich die gleichmäßigste Dispergierung des Gases in der Wirbelschicht liefert. Dazu im Widerspruch stehen Messungen von Bergougnou und Mitarbeitern [8, 9] an mit Lochböden angeströmten Schichten, die den ebenfalls plausiblen Schluß zulassen, daß an den sich über den Bodenöffnungen ausbildenden Strahlen

ein besonders intensiver Stoffaustausch stattfindet. Dies würde bedeuten, daß im Falle einer Reaktion in der Wirbelschicht mit Anströmung durch Lochboden der Umsatz erheblich über demjenigen Wert für eine Anströmung mit poröser Platte liegen müßte.

Das Problem des Gasverteilereinflusses hat sich bisher einer genaueren Erklärung entzogen. Ein Grund hierfür mag sein, daß eine Untersuchung des Einflusses technischer Gasverteilerkonstruktionen auf das Betriebsverhalten eines Wirbelschichtreaktors nur möglich ist bei Verwendung einer Wirbelschicht von mindestens halbtechnischen Abmessungen. Dies scheitert in der Praxis meistens an dem dafür erforderlichen hohen finanziellen und technischen Aufwand.

Eine genaue Durchsicht der in der Literatur vorliegenden Untersuchungen zum Stoffaustausch- und Reaktionsverhalten von Wirbelschichtreaktoren zeigt, daß bisher einerseits Laborwirbelschichten mit Anströmung durch poröse Platten untersucht wurden, andererseits halbtechnische und technische Wirbelschichten mit unterschiedlichen Gasverteilertypen und mit Betthöhen über 2 - 3 m. Bei derart hohen Schichten ist aber erfahrungsgemäß ein Bodeneinfluß kaum noch zu erkennen.

Die vorliegende Arbeit untersucht den Einfluß der Gasverteilerkonstruktion auf das Betriebsverhalten eines Wirbelschichtreaktors. Die verwendete Versuchsanlage besitzt mit einem Wirbelschichtdurchmesser von einem Meter halbtechnische Abmessungen. Die verwendeten Schichthöhen liegen unterhalb von 1 m, dadurch kann ein signifikanter Einfluß des Verteilerbodens erwartet werden. Durchgeführt wurden sowohl Tracergasverweilzeitverteilungsmessungen als auch Messungen des Umsatzes einer chemischen Reaktion. Hierbei wurden als Gasverteiler poröse Platte, Lochboden und Düsenboden (siehe Abb. 1.1) untersucht.

2. Stand des Wissens auf dem Gebiet der mathematischen Beschreibung von Wirbelschichtreaktoren

Ein grundlegendes Merkmal der in der technischen Praxis üblichen Katalysator-Wirbelschichten ist, daß der Hauptteil des Reaktionsgases in Form von Blasen durch die Wirbelschicht transportiert wird und erst nach Austausch über die Blasengrenze hinweg an der heterogen katalytischen Reaktion beteiligt ist. Die Literaturübersichten von Grace [12], Rowe [13], Horio und Wen [14] und v. Swaaij [15] zeigen, daß sich im wesentlichen die in Abb. 2.1 dargestellten beiden Modelltypen, Blasenmodelle und Zweiphasenmodelle unterscheiden lassen.

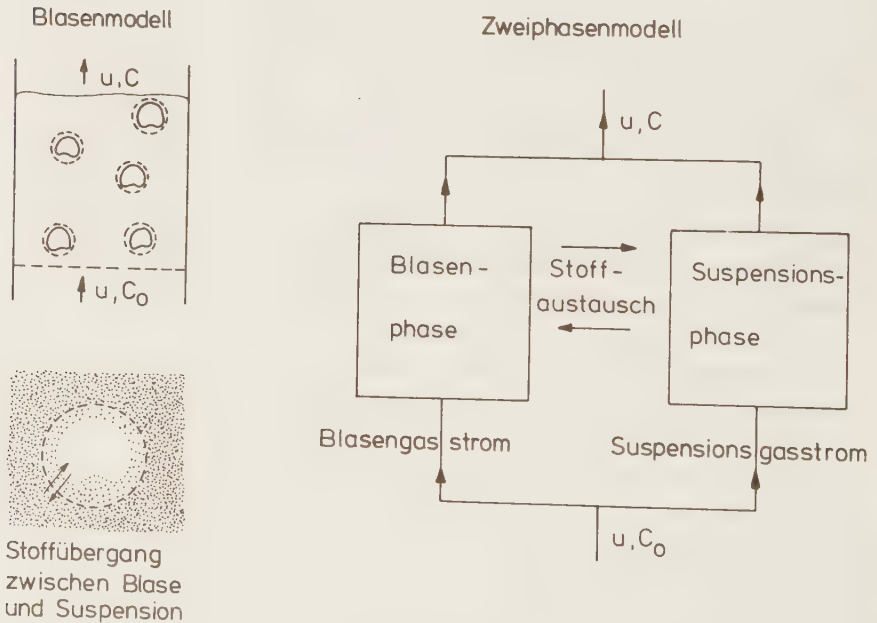


Abb. 2.1: Wirbelschichtreaktormodelle

Bei den Blasenmodellen wird, ausgehend vom Stoffaustausch an der Einzelblase unter Zuhilfenahme einer empirischen Korrelation für die Blasensteiggeschwindigkeit und Annahmen für den Gastransport in der Suspension der Stoffaustausch der gesamten Wirbelschicht und damit deren Reaktionsverhalten berechnet.

Die Zweiphasenmodelle gehen von einer Aufteilung des Wirbelschichtreaktors in eine Blasenphase und in eine Suspensionsphase aus. Der Stoffaustausch zwischen diesen Phasen wird durch einen Gesamtstoffaustausch (cross-flow) beschrieben.

Eine Untergliederung dieser Modelltypen ergibt sich zwangsläufig durch unterschiedliche Ansätze für die Suspensionsgasströmung bzw. Suspensionsgasvermischung, durch die Berücksichtigung von Bodenzone und Freeboard und besonders durch die Annahme bestimmter Stoffübergangsmechanismen.

2.1 Das Blasenmodell von Kunii und Levenspiel

Stellvertretend für die Klasse der Blasenmodelle wird hier das Modell von Kunii und Levenspiel [19, 22] vorgestellt. Kunii und Levenspiel unterscheiden als miteinander in Austausch stehende Bereiche Blase, cloud/wake und Emulsion (siehe Abb. 2.2).

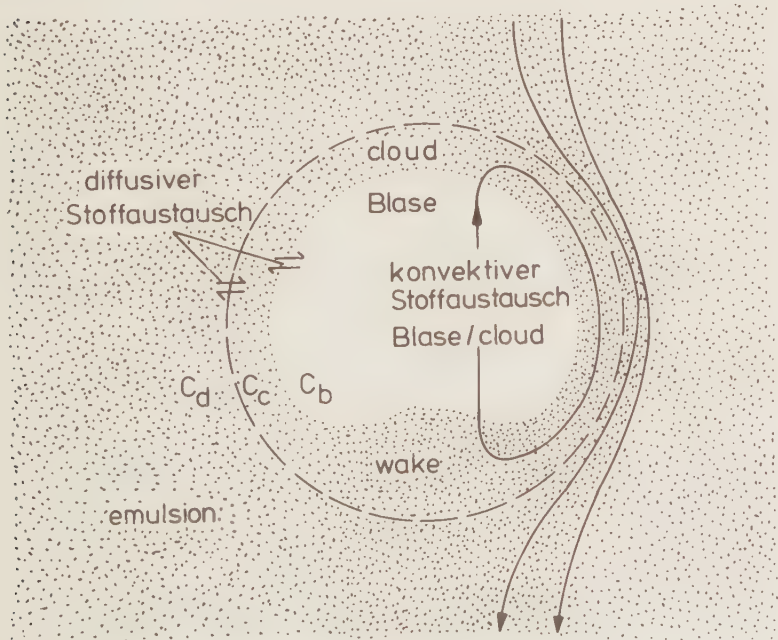


Abb. 2.2: Blasenmodell von Kunii und Levenspiel

In der Literatur liegen verschiedene Modellvorstellungen für die Stoffaustauschmechanismen zwischen diesen Bereichen vor, z. B. Stoffaustausch durch rein diffusive Vorgänge [16], Konvektion [17], Diffusion und Konvektion [18] und mit zusätzlichem Stoffaustausch durch "cloud shedding" [20]. Kunii und Levenspiel nehmen diffusiven und konvektiven Austausch zwischen Blase und cloud/wake, und diffusiven Austausch zwischen cloud/wake und Emulsion an. Für die Berechnung des Umsatzes einer irreversiblen, heterogen katalytischen Reaktion erster Ordnung liegt der Modellierung nach Kunii und Levenspiel die Annahme eines einheitlichen Blasendurchmessers d_b für die gesamte Wirbelschicht und Gegenstrom des Suspensionsphasengases zur Blasenphase für Gasgeschwindigkeiten u , die oberhalb des 6- bis 11-fachen der Lockerungsgeschwindigkeit u_{mf} liegen, zugrunde (siehe Abb. 2.3).

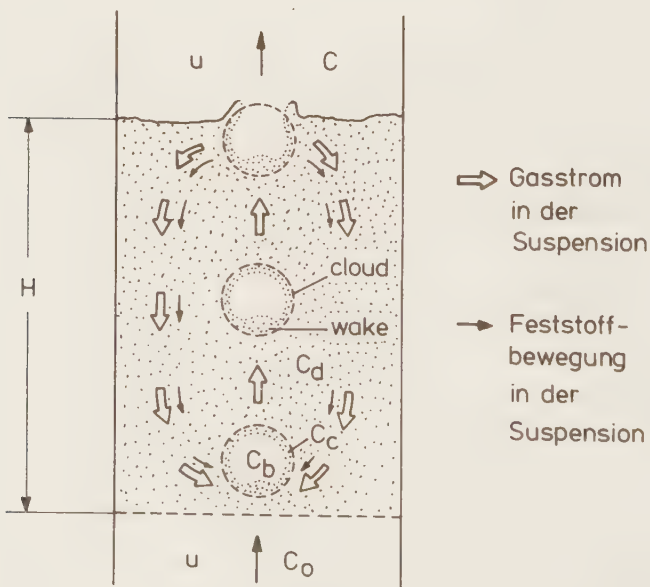


Abb. 2.3: Wirbelschichtreaktormodell von Kunii und Levenspiel

Für den Umsatz X wird in [19] angegeben:

$$X = 1 - e^{-K_f} \quad (2.1)$$

für K_f gilt:

$$K_f = \frac{H \cdot k_r}{v_b} \left[\gamma_b + \frac{1}{\frac{k_r}{k_{bc}} + \frac{1}{\gamma_c + \frac{1}{\frac{k_r}{k_{cd}} + \frac{1}{\gamma_d}}}} \right] \quad (2.2)$$

γ_b , γ_c , γ_d sind die jeweiligen Feststoffanteile in Blase, cloud/wake und Emulsion. k_r ist die auf das Katalysatorvolumen bezogene Reaktionsgeschwindigkeitskonstante, H die Höhe der expandierten Wirbelschicht. Die Blasensteiggeschwindigkeit v_b wird nach Davidson und Harrison [18] berechnet:

$$v_b = (u - u_{mf}) + 0.711 \sqrt{g \cdot d_b} \quad (2.3)$$

(es ist anzumerken, daß in Gl. (2.3) der Einfluß des Wirbelschichtdurchmessers auf die Blasensteiggeschwindigkeit nicht berücksichtigt wird, siehe Abschnitt 2.3).

Für den auf das Blasenvolumen bezogenen Stoffaustauschkoeffizienten k_{bc} zwischen Blase und cloud gilt:

$$k_{bc} = 4.5 \frac{u_{mf}}{d_b} + 5.85 \left[\frac{D^2 g}{d_b^5} \right]^{1/4} \quad (2.4)$$

D ist der molekulare Diffusionskoeffizient des Reaktanden im Gasgemisch.

Der Stoffaustauschkoeffizient k_{cd} zwischen cloud/wake und Emulsion berechnet sich aus:

$$k_{cd} = 6.77 \sqrt{D_e \cdot \epsilon_{mf} \left[v_b - (u - u_{mf}) + 2 \frac{u_{mf}}{\epsilon_{mf}} \right]^3} \quad (2.5)$$

Der effektive Diffusionskoeffizient D_e kann dabei zwischen dem molekularen Diffusionskoeffizienten D und dem Wert (D/ϵ_{mf}) liegen, mit ϵ_{mf} dem Lücken-grad der Wirbelschicht bei Minimalfluidisation.

Für einzelne Parameter dieses Modells, z. B. für die Feststoffanteile γ_b und γ_c , liegen keine zuverlässigen Informationen vor. Darüber hinaus ist unbekannt, wie man den Blasendurchmesser d_b im konkreten Anwendungsfall ermittelt. Das Modell ist bisher nur zur Beschreibung von Messungen in der Weise verwendet worden, daß durch Anpassung der Modellrechnung an Messungen ein "effektiver" Blasendurchmesser für das betreffende System bestimmt wurde. Das Modell enthält keine Aussagen zur Maßstabsvergrößerung.

2.2 Das Zweiphasenmodell von May

Die Entwicklung des katalytischen Wirbelschichtcrackens in den USA erwies sich als durchschlagender Erfolg. Erste Veröffentlichungen zur eingehenden Untersuchung von Wirbelschichtreaktoren sind deshalb eng mit Problemen des Wirbelschichtcrackens verbunden, wie z. B. Verweilzeitverteilungsmessungen im Regenerator (Voice, 1949 [23, 24]), Gas- und Feststoffvermischung im Regenerator (Askins, 1951 [25]), Gasvermischung in einem Modellreaktor von 7.6 cm Durchmesser (Gilliland, 1952 [26, 27]) und Verweilzeitverteilungsmessungen am Regenerator (Danckwerts, 1954 [29, 30]). Insbesondere von der Esso Research and Engineering Company wurden derartige Probleme intensiv untersucht. May, einer ihrer Mitarbeiter, publizierte 1959 ein einfaches, speziell auf Scale-Up-Fragen zugeschnittenes Zweiphasenmodell und interpretierte damit Verweilzeitverteilungsmessungen an Wirbelschichtreaktoren mit Durchmessern von 0.076 m bis 1.5 m [29, 30]. Im Rahmen der Scale-Up-Untersuchungen zum Shell-Chlorine-Process (SCP) ist dieses Modell von van Deemter [31] mathematisch weiterentwickelt und von van Swaaij [32], de Vries [33] und de Groot [34] unter Einführung zusätzlicher Modellvereinfachungen für die Interpretation einer großen Anzahl von Verweilzeitverteilungs- und Umsatzmessungen verwendet worden.

Das von May entwickelte Zweiphasenmodell für eine heterogen katalytische Reaktion im Wirbelschichtreaktor geht von der Annahme aus, daß der Stoffaustausch zwischen Blase und Suspension der geschwindigkeitsbestimmende Schritt ist. Da in Wirbelschichten einerseits die große Relativbewegung Partikel/Fluid den Stofftransportwiderstand durch Filmdiffusion vernachlässigbar macht, andererseits die verwendete Größe der Katalysatorpartikel

von etwa 30 bis 300 μm den Einfluß der Porendiffusion minimiert, erscheint diese Annahme durchaus gerechtfertigt. Die Reaktion in der Suspensionsphase kann dann als pseudohomogene Reaktion in das Modell eingesetzt werden. Für die Bilanzierung wird der Wirbelschichtreaktor in Blasen- und Suspensionsphase aufgeteilt, wobei ein Stoffaustausch zwischen diesen Phasen berücksichtigt wird (Abb. 2.4).

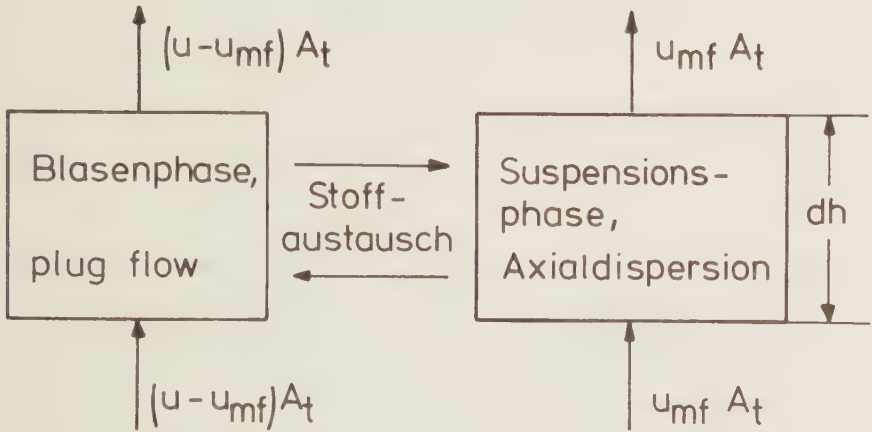


Abb. 2.4: Zweiphasenmodell von May

Es werden folgende Annahmen getroffen:

1. Alles Gas, was über die zur Minimalfluidisation erforderliche Menge hinausgeht, durchströmt das Bett in der Blasenphase.
2. Zwischen Blasen- und Suspensionsphase findet ein Stoffaustausch statt, der mit dem über die Höhe der Wirbelschicht gemittelten und auf das Wirbelschichtvolumen bezogenen Stoffaustauschkoeffizienten α' beschrieben wird.
3. Die Blasenphase ist feststofffrei angenommen. Das Gas durchströmt die Blasenphase in Kolbenströmung.
4. Bei der Strömung des Suspensionsphasengases wird eine Axialdispersion, gekennzeichnet durch den Dispersionskoeffizienten D_{ax} , zugelassen.

5. Die Reaktion findet nur in der Suspensionsphase statt, da die Blasenphase feststofffrei angenommen ist. Die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante k der heterogen katalytischen Reaktion erster Ordnung ist auf das Volumen der Suspensionsphase bezogen.

Für den Umsatzgrad X einer heterogen katalytischen Reaktion erster Ordnung im Wirbelschichtreaktor ergibt sich:

$$X = 1 - \frac{1}{1 + \beta} \sum_{i=1}^3 \frac{Q_i}{P} e^{x_i} \left[\frac{N_{\alpha}}{N_{\alpha} + x_i} + \beta \right] \quad (2.6)$$

mit x_i den Wurzeln der kubischen Gleichung

$$x^3 + [N_{\alpha} - \beta N_E] x^2 - [(\beta N_{\alpha} + N_{\alpha} + N_r) N_E] x - N_{\alpha} N_E N_r = 0$$

und

$$Q_1 = \left[x_2 - \beta N_E + \frac{\beta N_{\alpha} N_E}{N_{\alpha} + x_2} \right] x_3 e^{x_3} - \left[x_3 - \beta N_E + \frac{\beta N_{\alpha} N_E}{N_{\alpha} + x_3} \right] x_2 e^{x_2}$$

$$Q_2 = \left[x_3 - \beta N_E + \frac{\beta N_{\alpha} N_E}{N_{\alpha} + x_3} \right] x_1 e^{x_1} - \left[x_1 - \beta N_E + \frac{\beta N_{\alpha} N_E}{N_{\alpha} + x_1} \right] x_3 e^{x_3}$$

$$Q_3 = \left[x_1 - \beta N_E + \frac{\beta N_{\alpha} N_E}{N_{\alpha} + x_1} \right] x_2 e^{x_2} - \left[x_2 - \beta N_E + \frac{\beta N_{\alpha} N_E}{N_{\alpha} + x_2} \right] x_1 e^{x_1}$$

$$P = x_1 e^{x_1} \left[\frac{N_{\alpha} (x_3 - \beta N_E)}{N_{\alpha} + x_2} - \frac{N_{\alpha} (x_2 - \beta N_E)}{N_{\alpha} + x_3} \right]$$

$$+ x_2 e^{x_2} \left[\frac{N_{\alpha} (x_1 - \beta N_E)}{N_{\alpha} + x_3} - \frac{N_{\alpha} (x_3 - \beta N_E)}{N_{\alpha} + x_1} \right]$$

$$+ x_3 e^{x_3} \left[\frac{N_{\alpha} (x_2 - \beta N_E)}{N_{\alpha} + x_1} - \frac{N_{\alpha} (x_1 - \beta N_E)}{N_{\alpha} + x_2} \right]$$

Die dimensionslosen Größen N_α , N_r , N_E und β in dieser Berechnungsgleichung sind dabei definiert durch:

$$N_\alpha = \frac{\alpha' \cdot H}{u - u_{mf}} = \text{Anzahl Stoffaustauscheinheiten}$$

$$N_r = \frac{K (1 - \epsilon_b) H}{u - u_{mf}} = \text{Anzahl Reaktionseinheiten}$$

$$N_E = \frac{(u - u_{mf}) H}{D_{ax} (1 - \epsilon_b) \epsilon_{mf}} = \text{Anzahl Dispersionseinheiten}$$

$$\beta = \frac{u_{mf}}{u - u_{mf}}$$

Aus Scale-Up-Versuchen an Wirbelschichtreaktoren sind von v. Swaaij [32] und von Chiba/Kobayashi [37] Korrelationen für die Anzahl Stoffaustauscheinheiten N_α abgeleitet worden. Die zugrunde liegenden Messungen zeigen, daß mit größerem Schichtdurchmesser und mit größeren Wirbelschichthöhen der Stoffaustausch zwischen den Phasen, und damit der Reaktionsumsatz, wesentlich verringert wird. Das Zweiphasenmodell liefert jedoch keine physikalische Erklärung für diese Maßstabsabhängigkeit des Gesamtstoffaustausches.

2.3 Das erweiterte Zweiphasenmodell von Werther

Um den versuchstechnischen Aufwand für die Maßstabsvergrößerung von Wirbelschichtverfahren möglichst gering zu gestalten, ist als Hauptforderung an ein entsprechendes Wirbelschichtreaktormodell zu stellen, daß es für Scale-Up-Rechnungen verwendbar sein muß, d.h. es muß den Einfluß der Wirbelschichtgeometrie auf das Betriebsverhalten des Reaktors berücksichtigen.

Werther verknüpft in seinem Modellansatz die aus eigenen Messungen an Wirbelschichten mit halbtechnischem Maßstab gewonnenen strömungsmechanischen Grundlagen, wie Blasengrößenverteilungen und Blasensteiggeschwindigkeiten, mit aus der Literatur bekannten Daten zum Stoffaustausch- und Reaktionsverhalten von Wirbelschichtreaktoren [5, 6].

Die Tatsache, daß bei den in der Praxis üblichen feinkörnigen Katalysatoren der weitaus überwiegende Teil des Wirbelgases die Schicht in Form von Blasen durchströmt, führt in dem Modell zur grundlegenden Annahme, daß der Stoffübergang aus den Blasen in die umgebende Katalysatorsuspension der bestimmende Schritt für das Ablaufen einer heterogen katalytischen Reaktion ist. Im Modell wird dieser Stoffübergang und die nachfolgende Umsetzung in der Suspensionsphase mit Modellvorstellungen, wie sie in der Gas/Flüssig-Reaktortechnik üblich sind, beschrieben. Der Stoffübergang wird dabei als Absorption der Reaktanden aus der Blasenphase mit nachfolgender pseudohomogener Reaktion in der Suspensionsphase beschrieben. Der Stofftransport von der Blasenoberfläche in die Suspensionsphase hinein wird mit Hilfe der Filmtheorie dargestellt.

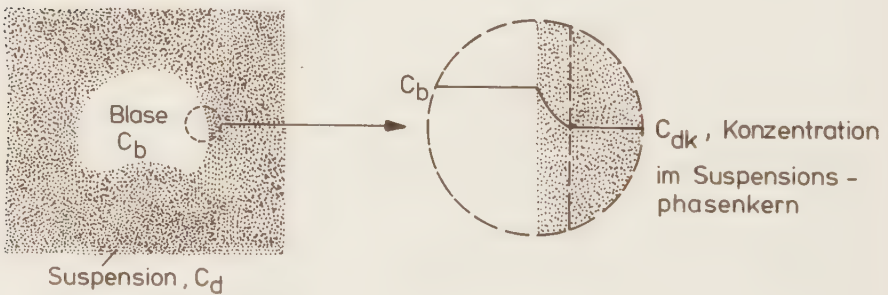


Abb. 2.5: Stoffübergang zwischen Blasen- und Suspensionsphase nach dem erweiterten Zweiphasenmodell

Neben den Annahmen des Zweiphasenmodells von May sind in diesem Modell folgende weitere Annahmen getroffen:

1. Der Stoffaustausch zwischen Blasen- und Suspensionsphase wird durch den auf die Austauschfläche bezogenen Stoffaustauschkoeffizienten α beschrieben. Die Austauschfläche ermittelt sich aus der Summe der Oberflächen aller in der Wirbelschicht befindlicher Blasen. Die Stoffübergangseigenschaften werden für die Wirbelschicht im ganzen ermittelt, d.h. sowohl die lokale spezifische Austauschfläche als auch der lokale Stoffübergangskoeffizient werden für eine gegebene Wirbelschicht unabhängig von der Höhe über dem Gasverteilerboden und der radialen Entfernung von der Wirbelschichtachse angenommen.

2. Da für feinkörnige Katalysatoren grundsätzlich gilt, daß die Betriebsgasgeschwindigkeit u wesentlich über der Gasgeschwindigkeit bei Minimalfluidisation u_{mf} liegt, kann die Durchströmung der Suspensionsphase vernachlässigt werden ($u - u_{mf}$) $\gg u_{mf}$.
3. Eine Axialdispersion des Gases in der Suspensionsphase wird vernachlässigt.

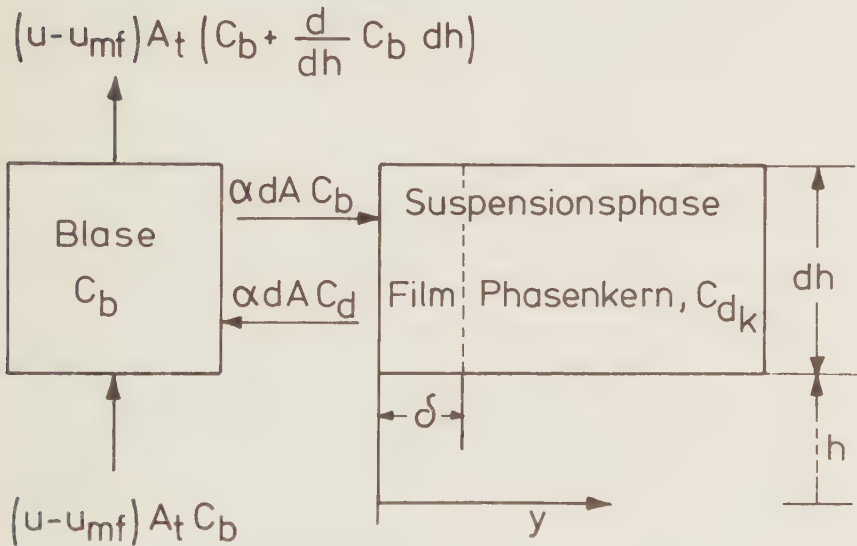


Abb. 2.6: Bilanzierung für das erweiterte Zweiphasenmodell

Die Bilanzierung am differentiellen Höhenelement des Reaktors (Abb. 2.6), getrennt für Blasenphase, Film und Suspensionsphasenkern, ergibt für den einfachsten Fall der irreversiblen Reaktion erster Ordnung das folgende System von drei Differentialgleichungen.

$$- (u-u_{mf}) A_t dh \frac{dC_b}{dh} + DdA \frac{\partial C_d}{\partial y} \Big|_{y=0} = 0 \quad (2.7)$$

$$DdA \frac{\partial^2 C_d}{\partial y^2} - KdA C_d = 0 \quad (2.8)$$

$$- DdA \left. \frac{\partial C_d}{\partial y} \right|_{y=\delta} - k A_t dh (1-\epsilon_b - a\delta) C_{d_k} = 0 \quad (2.9)$$

mit A_t = Querschnittsfläche des Reaktors

A = Stoffaustauschfläche

y = Querkoordinate, positiv von der Blasenoberfläche in die Suspensionsphase hinein gerechnet

Nach der Filmtheorie [10] folgt für die Filmdicke $\delta = \frac{D}{\alpha}$

Mit den Randbedingungen für

$$\begin{aligned} h = 0: & \quad C_b = C_o \\ y = 0: & \quad C_d = C_b \\ y = \delta: & \quad C_d = C_{d_k} \quad \text{Konzentration im Phasenkern} \end{aligned}$$

folgt durch Integration des Gleichungssystems schließlich für den Reaktionsumsatz X :

$$X = 1 - \exp \left[- \frac{(\phi - 1) Ha + \tanh Ha}{(\phi - 1) Ha \tanh Ha + 1} Ha N_\alpha \right] \quad (2.10)$$

mit

$$N_\alpha = \frac{\alpha \cdot a \cdot H}{u - u_{mf}} = \text{Anzahl der Stoffaustauscheinheiten} \quad (2.11)$$

$$Ha = \frac{\sqrt[3]{kD}}{\alpha} = \text{Hattazahl} \quad (2.12)$$

$$\phi = \frac{a \delta}{(1 - \epsilon_b)} = \frac{\text{Verhältnis von Filmvolumen zu gesamtem Volumen der Suspensionsphase}}{} \quad (2.13)$$

Die Berechnung des Reaktionsumsatzes für den Wirbelschichtreaktor erfordert somit:

1. Kenntnis der Reaktionskinetik, bestimmbar z. B. durch Messungen am Festbettreaktor.

2. Kenntnis des Stoffübergangskoeffizienten zwischen Blasen und Suspensionsphase.
3. Kenntnis der strömungsmechanisch bestimmten Größen wie Blasengasholdup ϵ_b und volumenspezifische Stoffaustauschfläche a .

Eine Rückführung dieser Kenngrößen auf einfach angebbare Parameter wie Wirbelschichthöhe und -durchmesser gelingt unter Zuhilfenahme neuerer Erkenntnisse über die Strömungsmechanik von Wirbelschichten. Nach Werther [11] kann die lokale mittlere Blasengröße d_b vorausberechnet werden, als Funktion der Höhe h über dem Verteilerboden und der Wirbelgasgeschwindigkeit u :

$$d_b = \begin{cases} 0.0085 \left[1 + 27 (u - u_{mf}) \right]^{1/3} \left[1 + 6.8 h \right]^{1.2} & \text{für } h < h^* \\ 0.0085 \left[1 + 27 (u - u_{mf}) \right]^{1/3} \left[1 + 6.8 h^* \right]^{1.2} & \text{für } h \geq h^* \end{cases} \quad (2.14)$$

Hierbei gehen die Eigenschaften des Fluidisiergutes zum einen in Gestalt der Minimalfluidisationsgeschwindigkeit u_{mf} ein, zum andern in den Parameter h^* . h^* ist diejenige Höhe oberhalb des Gasverteilerbodens, in der ein dynamisches Gleichgewicht zwischen Wachstum und Zerfall der Blasen erreicht wird, d.h. von der Höhe h^* an kann mit einer konstanten Blasengröße gerechnet werden. Wie Werther zeigt [5], wird h^* durch die Korngrößenverteilung des Feststoffes beeinflusst.

Die lokale mittlere Blasenaufstiegsgeschwindigkeit $\bar{v}_b$ ist abhängig vom Blasendurchmesser d_b und vom Durchmesser d_t der Wirbelschicht,

$$\bar{v}_b = \varphi(d_t) \sqrt{g d_b} \quad (2.15)$$

mit

$$\varphi(d_t) = \begin{cases} 0.64 & d_t \leq 0.1 \text{ m} \\ 1.60 d_t^{0.4} & 0.1 < d_t < 1 \text{ m} \\ 1.6 & d_t \geq 1 \text{ m} \end{cases}$$

Die physikalische Ursache für die größere Steiggeschwindigkeit von Blasen in Wirbelschichten größerer Durchmesser dürfte nach Werther [7] im wesentlichen in Wechselwirkungen zwischen den Blasen zu suchen sein, die bei großen Wirbelschichtdurchmessern zur Bildung sehr schnell aufsteigender Blasketten führen.

Durch Integration der lokalen Blasenoberflächen und Blasenvolumina über die Höhe der Wirbelschicht können die für Gl. (2.10) benötigten Größen Blasengasholdup ϵ_b und spezifische Austauschfläche a berechnet werden.

$$a = 29.1 \frac{u - u_{mf}}{\sqrt{1+27 (u-u_{mf})}} \left[\gamma(d_t) F(H, h^*) \right]^{-1} \quad (2.16)$$

mit

$$F = \frac{0.18 \left[1 - (1+6.84 H)^{-0.8} \right]}{H} \quad \text{für } H < h^*$$

$$F = \frac{0.18 \left[1 - (1+6.84 h^*)^{-0.8} \right] + (1+6.84 h^*)^{-1.8} (H-h^*)}{H} \quad \text{für } H \geq h^*$$

$$\epsilon_b = 2.47 \frac{(u - u_{mf})}{\left[(1+27 (u-u_{mf})) \right]^{1/6}} \frac{J(H, h^*)}{i(d_t)} \quad (2.17)$$

mit

$$J = \frac{0.37}{H} \left[(1+6.84 H)^{0.4} - 1 \right] \quad \text{für } H < h^*$$

$$J = \frac{0.37}{H} \left[(1+6.84 h^*)^{0.4} - 1 \right] + (1+6.84 h^*)^{-0.6} \left(1 - \frac{h^*}{H} \right) \quad \text{für } H \geq h^*$$

Für den Stoffübergangskoeffizient α schließlich erhält Werther durch Auswertung von in der Literatur vorliegenden Messungen zum Reaktions- und Stoffaustauschverhalten an Wirbelschichtreaktoren unterschiedlicher Größen den Ausdruck:

$$\alpha = 3.44 \cdot 10^{-4} \frac{1}{\kappa} \sqrt{1 + 27 (u-u_{mf})} \quad (2.18)$$

mit

$$\kappa = 0.15 \quad \text{für Sand}$$

$$0.055 \quad \text{für poröse Katalysatorträger}$$

Die für die Ableitung dieser Korrelation verwendeten Messungen des Stoffaustausches und Reaktionsumsatzes von v. Swaaij [32], de Vries [33], de Groot [34] und Avedesian/Davidson [60] lassen keinen signifikanten Bodeneinfluss erkennen. Die Frage des Bodeneinflusses wurde deshalb von Werther [59] außer acht gelassen.

2.4 Beschreibung des Einflusses der Gasverteilung durch Behie und Bergougrou

Messungen von Cooke, Harris, Highley und Williams haben gezeigt, daß bei schnellen Reaktionen der Großteil der Umsetzung im ersten halben Meter der Wirbelschicht stattfindet, wobei Veränderungen der Gasverteilerkonstruktion einen signifikanten Einfluß ergaben. Hovmand [39] erhielt durch Vermehrung der Bohrungszahl bei gleichzeitiger Verringerung des Bohrungsdurchmessers eine Verbesserung des Reaktionsumsatzes. Behie und Bergougrou führten Messungen des Stoffaustausches in der Bodenzone durch [8] und entwickelten anhand der Meßergebnisse ein Modell für mit Lochboden angeströmte Wirbelschichtreaktoren [9].

Das Modell geht von der Annahme aus (siehe Abb. 2.7), daß an den Bohrungsöffnungen feststehende Gasstrahlen hoher Geschwindigkeit entstehen, an deren Ende sich in der Höhe h_0 Blasen ablösen. Die Strahleindringtiefe h_0 wird dabei gemäß der Korrelation von Basov [40] für vertikal in Wirbelschichten eindringende Strahlen berechnet:

$$h_0 = \frac{\bar{d}_p}{0.0009 + 0.721 \bar{d}_p} d_0^{0.7} u_0^{0.35} \quad (2.19)$$

mit

$\bar{d}_p$ = Partikeldurchmesser des Fluidisiergutes [m]

d_0 = Bohrungsweite [m]

u_0 = Gasgeschwindigkeit in der Bohrung [m/s]

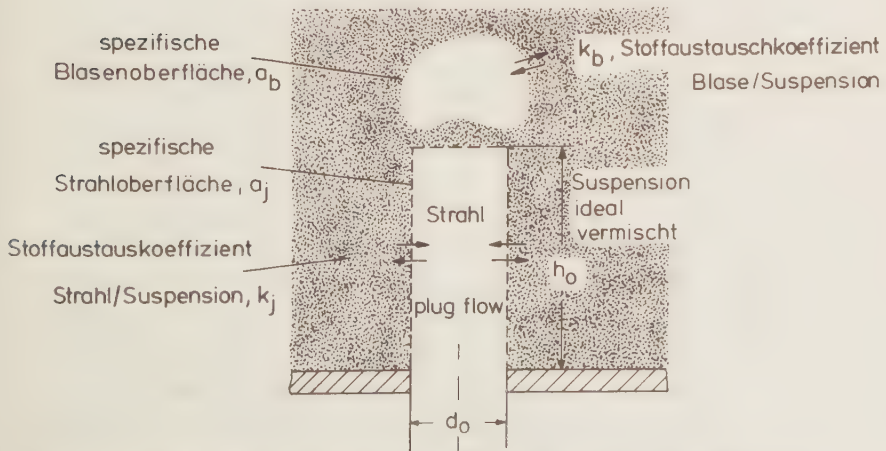


Abb. 2.7: Beschreibung des Bodeneinflusses durch Behie und Bergougrou

Die Modellannahme für eine heterogen katalytische Reaktion sind im einzelnen:

1. Der Gasstrahl ist radial vermischt und axial in Kolbenströmung
2. Die Blasenphase ist in Kolbenströmung
3. Die Suspensionsphase wird in der gesamten Wirbelschicht als ideal vermischt angesehen, die Suspensionsgasströmung wird vernachlässigt.
4. Der Stoffaustausch zwischen Strahl und Suspension wird durch einen auf die Strahloberfläche bezogenen Stoffaustauschkoeffizienten k_j beschrieben.
5. Im Strahl findet keine Reaktion statt.
6. Diffusionswiderstände in der Suspensionsphase sind vernachlässigt.
7. Die Reaktion in der Suspensionsphase ist durch einen Geschwindigkeitsansatz erster Ordnung beschreibbar mit der auf das Suspensionsvolumen bezogenen Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten k .

Der Umsatzgrad X der Reaktion ergibt sich dann zu [9]

$$X = \frac{N_r (1 - e^{-N_k})}{N_r + 1 - e^{-N_k}}$$

$$\text{mit } N_r = \frac{(1 - \epsilon_{bj}) H \cdot k}{u} = \text{Anzahl Reaktionseinheiten}$$

wobei ϵ_{bj} = Gasvolumenanteil in Strahlen und Blasen

$$\text{und } N_k = \frac{k_j \cdot a_j \cdot h_0}{u} + \frac{k_b \cdot a_b \cdot (H - h_0)}{u - u_{mf}}$$

= Anzahl Stoffaustauscheinheiten

Mit diesem Modell durchgeführte Beispielsrechnungen (siehe Anhang 9.1) lassen für eine Wirbelschichtanströmung mittels Lochboden einen wesentlich höheren Stoffaustausch und damit Reaktionsumsatz als bei einer Anströmung mit poröser Platte erwarten. Dies steht im Widerspruch dazu, daß die poröse Platte als Anströmboden offensichtlich die gleichmäßigste Dispergierung des Gases in der Wirbelschicht ermöglicht und damit auch bessere Stoffaustausch- und Reaktionsbedingungen liefern sollte.

3. Mathematische Beschreibung eines Wirbelschichtreaktors unter Berücksichtigung der Gasverteilung

Im folgenden wird nun ein Modell für die Beschreibung des Wirbelschichtreaktors unter besonderer Berücksichtigung der Gasverteilung vorgestellt. Dabei wird davon ausgegangen, daß die Strömungsmechanik derartiger Reaktionssysteme anhand bekannter empirischer Korrelationen für Blasengrößen und Blasensteiggeschwindigkeiten beschrieben werden kann.

3.1 Modellierungskonzept

Die mathematische Beschreibung des Gasverteilereinflusses auf Stoffaustausch- und Reaktionsverhalten eines Wirbelschichtreaktors basiert auf dem in Abschnitt 2.3 beschriebenen erweiterten Zweiphasenmodell und verwendet darüber hinaus folgende Annahmen:

1. Die Wirbelschicht wird in eine Bodenzone und in eine Blasenzone aufgeteilt (siehe Abb. 3.1). Die Höhe der Bodenzone ist bei vertikal eindringenden Strahlen (Lochboden) durch die Strahleindringtiefe gegeben, bei horizontalen Strahlen durch deren Austrittshöhe.

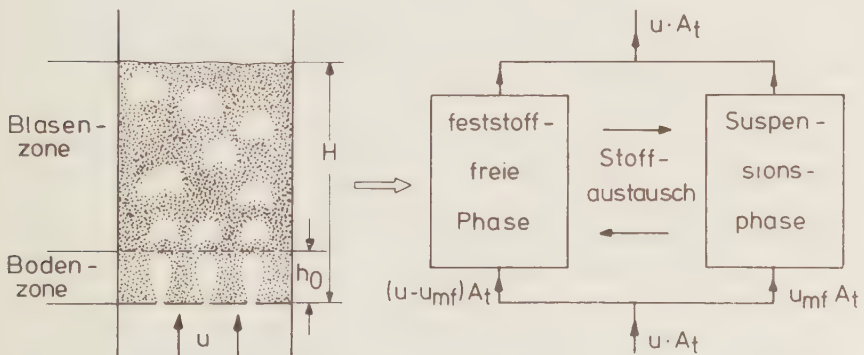


Abb. 3.1: Berücksichtigung der Gasverteilung im erweiterten Zweiphasenmodell

2. Das Gas in den Strahlen und das Gas in den Blasen werden zu einer Phase zusammengefaßt, die nachfolgend als "feststofffreie Phase" bezeichnet und der Suspensionsphase gegenübergestellt wird (siehe Abb. 3.1).
3. Die feststofffreie Phase und die Suspensionsphase stehen miteinander in Stoffaustausch. Dieser wird durch den flächenbezogenen Stoffaustauschkoeffizienten α charakterisiert.
4. Die spezifische Austauschfläche a ist definiert als die Summe der Austauschflächen in Bodenzone (Strahloberfläche) und Blasenzone (Blasenoberfläche) bezogen auf das Volumen der expandierten Wirbelschicht $H \cdot A_t$.

Mit Hilfe von empirischen Korrelationen für Bodenzone und Blasenzone ist es möglich, Aussagen über Strahlausbreitung und Blasenentwicklung in Abhängigkeit von der Gasverteilerkonstruktion zu machen.

3.2 Berechnung des Volumenanteils des Gases der feststofffreien Phase

Der in Strahlen und Blasen vorliegende Gasvolumenanteil ϵ_{bj} der Wirbelschicht läßt sich durch Integration des lokalen Gasvolumenanteils über die Höhe der Wirbelschicht berechnen. Wie Abb. 3.2 zeigt, muß hier eine Unterscheidung getroffen werden, ob die am Gasverteiler entstehenden Strahlen vertikal (Lochboden) oder horizontal (Düsenboden) in die Schicht eindringen oder ob, wie etwa beim Glockenboden und bei manchen Düsenböden, die Blasen direkt am Gasverteiler entstehen.

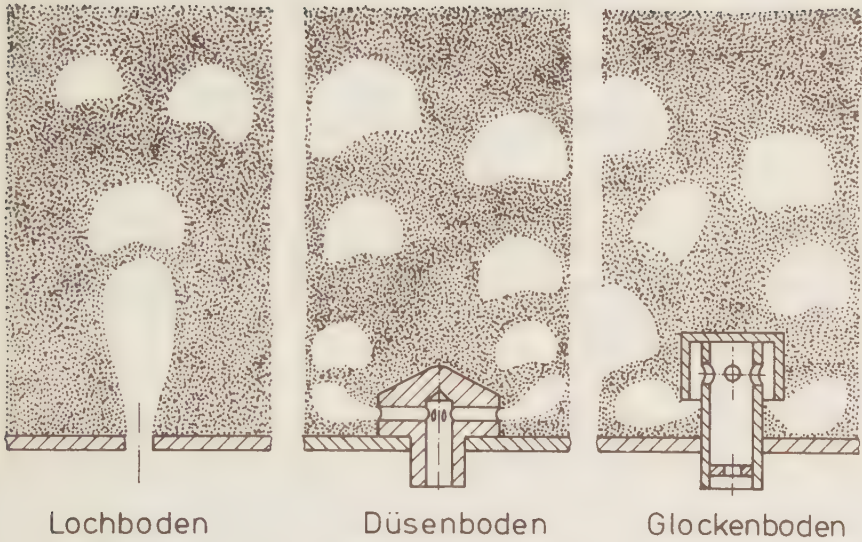


Abb. 3.2: Anströmung mit technischen Gasverteilern

Die Blasenentwicklung in mit technischen Gasverteilern versehenen Wirbelschichten kann nach Messungen von Werther [11] durch die Blasenanzfangsgröße $d_{b,0}$ und die Starthöhe des Blasenwachstums h_0 beschrieben werden.

Die Blasenanzfangsgröße läßt sich nach Davidson/Harrison [18] aus dem an der Verteileröffnung austretenden Gasvolumenstrom $\dot{V}_0$ berechnen

$$d_{b,0} = 1.3 \left[\frac{\dot{V}_0}{g} \right]^{0.2} \quad (3.1)$$

Die Starthöhe des Blasenwachstums ist beim Lochboden gleich der vertikalen Strahleindringtiefe und kann nach Merry berechnet werden [41]:

$$h_0 = 5.2 \cdot d_0 \left(\frac{\rho_f d_0}{\rho_s d_p} \right)^{0.3} \left[1.3 \left(\frac{u_0^2}{g d_0} \right)^{0.2} - 1 \right] \quad (3.2)$$

mit

d_o = Bohrungsdurchmesser

$\bar{d}_p$ = mittlerer Partikeldurchmesser

ρ_f, ρ_s = Dichte Fluid bzw. Feststoff

u_o = Gasgeschwindigkeit in der Bohrung

Werther hat mit einem kapazitiven Meßsystem lokale mittlere Blasengrößen als Funktion der Höhe über dem Gasverteiler bestimmt [11]. Für das Wachstum der Blasen in Abhängigkeit von der Gasverteilerkonstruktion gibt Werther folgende Korrelation an:

$$d_b = 0.0085 \left[1 + 27 (u - u_{mf}) \right]^{1/3} \left[1 + 6.84 (h - h_o + h') \right]^{1.21} \quad (3.3)$$

Die äquivalente Höhe h' für die Anströmung mit poröser Platte kann, wie in Abb. 3.3 gezeigt, aus der Blasenanzfangsgröße berechnet werden,

$$h' = \frac{\left[117 \cdot d_{b,o} \left[1 + 27 (u - u_{mf}) \right]^{-1/3} \right]^{0.83} - 1}{6.84} \quad (3.4)$$

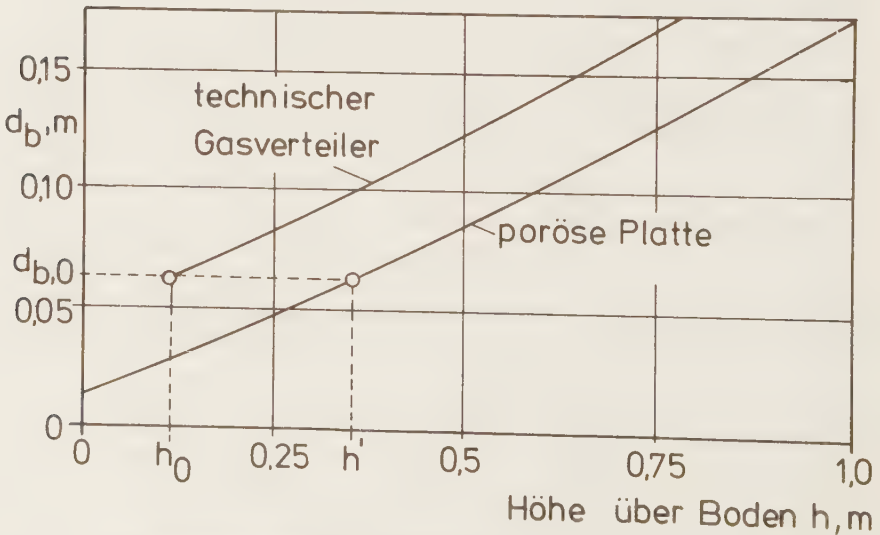


Abb. 3.3: Blasenwachstum bei Anströmung mit technischen Gasverteilern

Mit bekanntem Blasenwachstum als Funktion der Betriebsparameter sowie der Gasverteilerkonstruktion kann nun der Gasvolumenanteil in der Blasenphase durch Integration des lokalen Blasengasanteils zwischen Starthöhe des Blasenwachstums und Wirbelschichtoberfläche ermittelt werden.

Aus der Definition des Blasengasvolumenanteils

$$\epsilon_b = \frac{\text{Blasengasvolumen}}{\text{Schichtvolumen}} \quad (3.5)$$

folgt für den Anteil des Blasengasvolumens dV_b im Reaktorvolumenanteil $A_t \cdot dh$

$$dV_b = \epsilon_b(h) \cdot A_t \cdot dh \quad (3.6)$$

Der lokale Blasengasvolumenanteil $\epsilon_b(h)$ ist darstellbar als

$$\epsilon_b(h) = \frac{\dot{V}_b}{\dot{V}_b} \quad (3.7)$$

Nach Werther [11] kann der flächenbezogene Blasengasstrom mit

$$\dot{V}_b = \psi (u - u_{mf}) \quad (3.8)$$

beschrieben werden. Für die Anströmung mit poröser Platte gilt $\psi \approx 0.67$. Für die Anströmung mit technischen Gasverteilern gilt $\psi \approx 0.76$.

Bei Verwendung von Gl. (2.15) für die Blasensteiggeschwindigkeit $\bar{v}_b$ und Gl. (3.3) für die mittlere Blasengröße d_b als Funktion der Höhe über dem Boden folgt für das Blasengasvolumen im Bilanzelement:

$$dV_b = \frac{\psi (u - u_{mf}) A_t dh}{\varphi(d_t) 0.29 \left[1 + 27 (u - u_{mf}) \right]^{1/6} \left[1 + 6.84 (h - h_0 + h') \right]^{0.6}}$$

Integration über die Höhe zwischen den Grenzen h_0 und H und Bezug auf das Wirbelschichtvolumen $A_t \cdot H$ ergibt den Blasengasvolumenanteil ϵ_b der Wirbelschicht.

$$\epsilon_b = \frac{1.28 \cdot \psi (u - u_{mf})}{\gamma (d_t) \left[1 + 27 (u - u_{mf}) \right]^{1/6}} \frac{\left[1 + 6.84 (H - h_o + h') \right]^{0.4} - \left[1 + 6.84 h' \right]^{0.4}}{H} \quad (3.9)$$

Für die Berechnung des Gasvolumenanteils in den Bodenstrahlen wird eine Strahlgeometrie gemäß Abb. 3.4 angenommen.

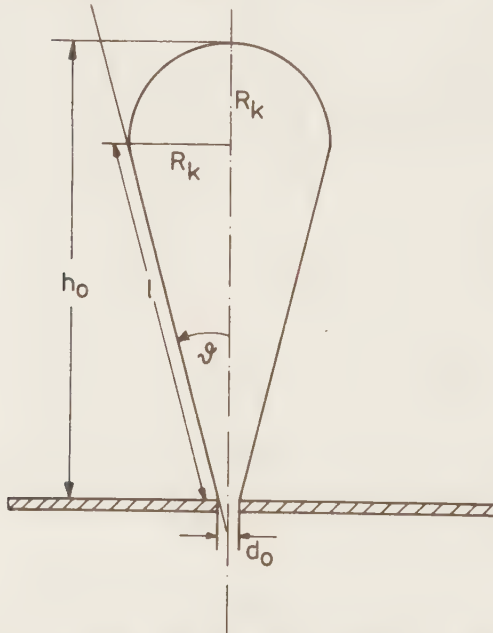


Abb. 3.4:
Geometrie der Boden-
strahlen

Durch Integration über die Volumina von Kegelstumpf und Halbkugel als Funktion der Strahleindringtiefe h_o und des Strahlöffnungswinkels 2φ kann das Volumen des Einzelstrahls V_j bestimmt werden [64]

$$V_j = \frac{\pi(h_o - R_k)}{3} \left(R_k^2 + \left(\frac{d_o}{2} \right)^2 + \frac{d_o R_k}{2} \right) + \frac{2}{3} \pi R_k^3 \quad (3.10)$$

Der Radius der Halbkugel ist

$$R_k = \frac{d_o/2 + h_o \tan \varphi}{1 + \tan^2 \varphi} \quad (3.11)$$

Nach Basov [40] und Merry [41] läßt sich für das in dieser Arbeit verwendete Fluidisiergut Sand ein halber Strahlöffnungswinkel von $\alpha = 15^\circ$ annehmen. Die Strahleindringtiefe h_0 ist mit Gl.(3.2) gegeben [69,73].

Der Gasvolumenanteil ϵ_j der Bodenstrahlen bezogen auf das Wirbelschichtvolumen ist

$$\epsilon_j = \frac{n_o V_j}{A_t H} \quad (3.12)$$

Hier ist n_o die Anzahl der Gaseintrittsbohrungen im Anströmboden.

Mit Definition des freien Flächenverhältnisses

$$\omega = \frac{\text{Gesamtfläche der Bohrungen}}{\text{Querschnittsfläche des Reaktors}} \quad (3.13)$$

folgt:

$$\epsilon_j = \frac{4}{3} \frac{\omega}{H} \left[\frac{(h_0 - R_k) \left(R_k^2 + \left(\frac{d_o}{2} \right)^2 + \frac{R_k d_o}{2} \right) + 2 R_k^3}{d_o^2} \right] \quad (3.14)$$

Der Volumenanteil des Gases der feststofffreien Phase

$$\epsilon_{bj} = \frac{\text{Gasvolumen Strahlen} + \text{Gasvolumen Blasen}}{\text{Schichtvolumen}} = \epsilon_b + \epsilon_j$$

folgt somit durch Addition von Gl. (3.9) und Gl. (3.14)

$$\begin{aligned} \epsilon_{bj} = & \frac{4}{3} \frac{\omega}{H} \frac{(h_0 - R_k) \left[R_k^2 + \left(\frac{d_o}{2} \right)^2 + \frac{R_k d_o}{2} \right] + 2 R_k^3}{d_o^2} + \\ & + \frac{1.28 \cdot \psi}{\gamma (d_t)} \frac{(u - u_{mf})}{[1 + 27(u - u_{mf})]^{1/6}} \frac{[1 + 6.84 (H - h_0 + h')]^{0.4} - [1 + 6.84 h']^{0.4}}{H} \end{aligned} \quad (3.15)$$

Bei Anströmung mittels poröser Platte reduziert sich Gl. (3.15) auf die bereits in Abschnitt 2.3 angegebene Gleichung für den Gasvolumenanteil der Blasenphase, wobei Werther $\psi = 0.715$ angenommen hat. Treten keine Bodenstrahlen auf, wie etwa beim Glockenboden, dann entfällt der erste Summand von Gl. (3.15), während die Starthöhe des Blasenwachstums h_0 durch die Verteilerkonstruktion gegeben ist. Treten horizontale Bodenstrahlen auf, wie etwa beim Düsenboden, so ist die horizontale Strahleindringtiefe L durch die von Merry [42] gegebene Korrelation

$$\frac{L}{d_0} = 5.25 \left[\frac{\rho_f u_0^2}{(1-\epsilon) \rho_s g d_p} \right]^{0.4} \left[\frac{\rho_f}{\rho_s} \right]^{0.2} \left[\frac{d_p}{d_0} \right]^{0.2} - 4.5 \quad (3.16)$$

zu bestimmen und in Gl. (3.14) bei Berechnung des Gasvolumenanteils der Bodenstrahlen zu verwenden [66,67].

Die Abbildungen 3.5 und 3.6 zeigen den Einfluß des Anströmbodens auf den Volumenanteil des Gases der feststofffreien Phase ϵ_{bj} für konstante Anströmgeschwindigkeit u und konstante Wirbelschichtgeometrie. Die Berechnung erfolgte für in dieser Arbeit verwendete Gasverteiler - poröse Platte, Lochboden und Düsenboden - mit den in Abb. 3.5 und 3.6 gegebenen Daten.

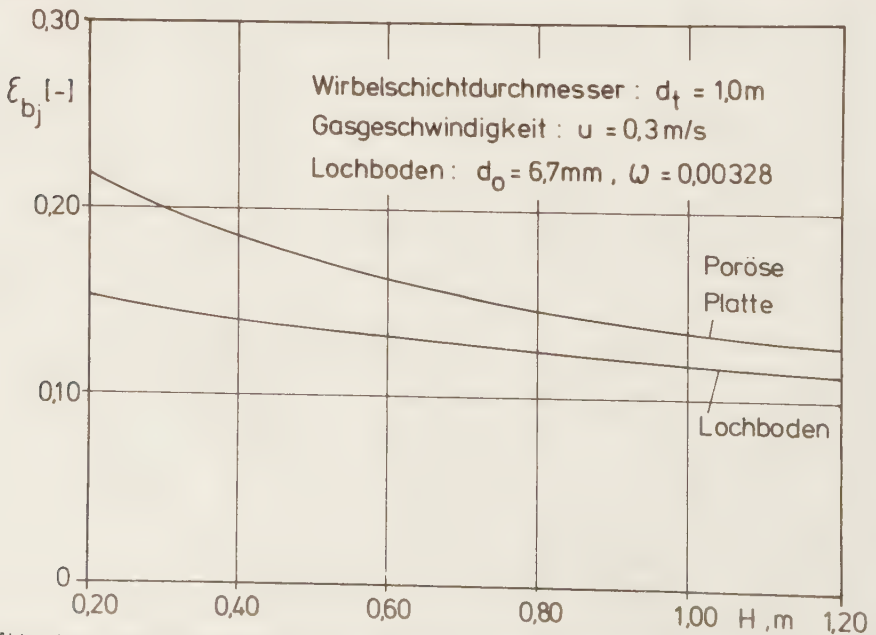


Abb. 3.5: Gasvolumenanteil ϵ_{bj} als Funktion der Wirbelschichthöhe für Anströmung mit poröser Platte und Lochboden

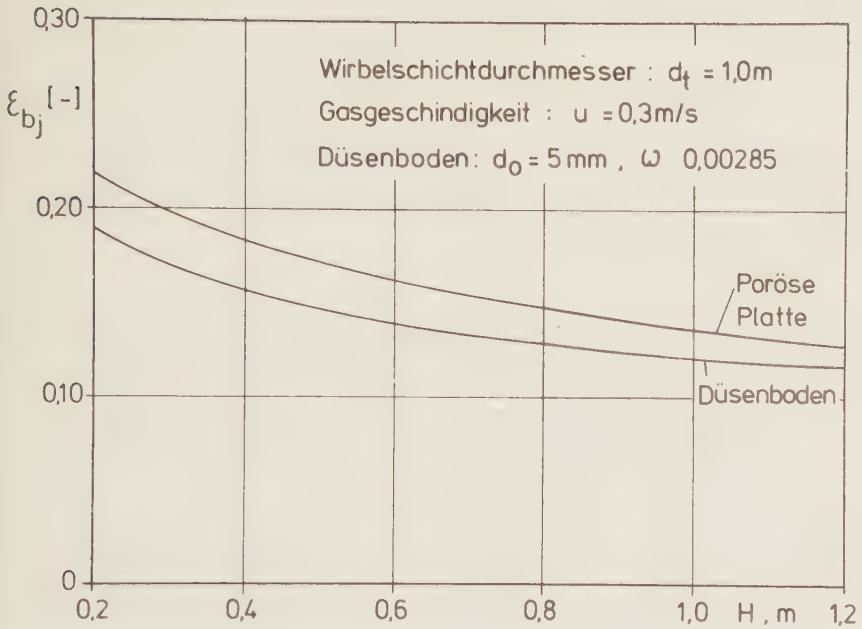


Abb. 3.6: Gasvolumenanteil ϵ_{bj} als Funktion der Wirbelschichthöhe für Anströmung mit poröser Platte und Düsenboden

3.3 Berechnung der spezifischen Stoffaustauschfläche zwischen feststofffreier Phase und Suspensionsphase

Die in Bodenzone und Blasenzone der Wirbelschicht zur Verfügung stehende Austauschfläche kann mit Hilfe der entsprechenden Korrelationen für Strahlausbreitung und Blasenentwicklung durch Integration der lokalen Austauschflächen über die Höhe der Wirbelschicht ermittelt werden.

Mit der in Abb. 3.4 gezeigten Geometrie der Bodenstrahlen gilt für die Mantellänge der Strahlen

$$l = \left[(h_0 - R_k)^2 + \left(R_k - \frac{d_0}{2} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (3.17)$$

mit R_k aus Gl. (3.11) und h_0 aus Gl. (3.2).

Die Oberfläche des Einzelstrahls S_j kann durch Integration über Mantelfläche des Kegelstumpfes und Oberfläche der Halbkugel mit Radius R_k berechnet werden mit [64]:

$$S_j = \pi \left(R_k + \frac{d_o}{2} \right) + 2 \pi R_k^2 \quad (3.18)$$

Aus der Definition der spezifischen Austauschfläche in der Bodenzone

$$a_j = \frac{n_o \cdot S_j}{A_t \cdot H}$$

mit n_o der Anzahl der Gaseintrittsöffnungen des Anströmbodens und Einführen des freien Flächenverhältnisses ω (Gl. 3.13) folgt:

$$a_j = \frac{4 \omega}{H} \left[\frac{1 \left(R_k + \frac{d_o}{2} \right) + 2 R_k^2}{d_o^2} \right] \quad (3.19)$$

Für die Berechnung der spezifischen Austauschfläche in der Blasenzone erfolgt die Bilanzierung am differentiellen Höhenelement der Wirbelschicht $A_t \cdot dh$. Die Anzahl der Einzelblasen n_b im Bilanzelement $A_t \cdot dh$ kann berechnet werden mit:

$$n_b = \frac{f A_t dh}{\bar{v}_b} \quad (3.20)$$

f ist die flächenbezogene Blasenfrequenz, $\bar{v}_b$ die mittlere Blasensteiggeschwindigkeit nach Gl. (2.15).

Die Blasen besitzen in der Höhe h einen mittleren, gemäß Gl. (3.3), berechenbaren Durchmesser d_b der volumengleichen Kugel. Die Oberfläche S_b der Einzelblase ist dann

$$S_b = \xi \pi d_b^2 \quad (3.21)$$

Der Formfaktor kann nach Werther [5] mit $\xi = 1.67$ angenommen werden. Die Austauschfläche im Volumenintervall A_t dh beträgt

$$dA_b = \frac{f \cdot A_t \cdot \xi \cdot \pi d_b^2 dh}{\bar{v}_b} \quad (3.22)$$

Da der flächenbezogene Blasengasstrom $\dot{V}_b$ gleich dem Produkt aus flächenbezogener Blasenfrequenz f und Blasen volumen ist, kann

$$f = \frac{6 \cdot \dot{V}_b}{\pi \cdot d_b^3} \quad (3.23)$$

in Gl. (3.22) eingesetzt werden.

Unter Verwendung der jeweiligen Gleichungen für $\dot{V}_b$ (3.8), $\bar{v}_b$ (2.15) und d_b (3.3) kann durch Integration über die Höhe der Wirbelschicht die gesamte in der Blasenzone zur Verfügung stehende Austauschfläche berechnet werden.

Die Integrationsgrenzen sind die Starthöhe h_0 des Blasenwachstums und die Höhe H der expandierten Wirbelschicht. Der Bezug der Austauschfläche auf das Wirbelschichtvolumen $A_t \cdot H$ ergibt die spezifische Austauschfläche der Blasenphase

$$a_b = \frac{436 \cdot \xi \cdot \psi}{\varphi(d_t)} \frac{(u - u_{mf})}{[1 + 27 (u - u_{mf})]^{1/2}} \frac{[1 + 6.84 h']^{-0.8} - [1 + 6.84 (H + h' - h_0)]^{-0.8}}{H} \quad (3.24)$$

Für die mittels technischer Gasverteiler angeströmte Wirbelschicht ist somit die spezifische Austauschfläche a gegeben mit: $a = a_j + a_b$

$$a = \frac{4 \omega}{H} \frac{1 \left(R_k + \frac{d_0}{2}\right) + 2 R_k^2}{d_0^2} + \frac{436 \cdot \xi \cdot \psi}{\varphi(d_t)} \frac{u - u_{mf}}{[1 + 27(u - u_{mf})]^{1/2}} \frac{[1 + 6.84 h']^{-0.8} - [1 + 6.84 (H + h' - h_0)]^{-0.8}}{H} \quad (3.25)$$

Für den Fall der Anströmung mit poröser Platte reduziert sich Gl. (3.25) auf die in Abschnitt 2.3 angegebene Gleichung für die spezifische Austauschfläche, wobei Werther $\psi = 0.715$ eingesetzt hat. Bei Anströmung mit Düsenböden muß die horizontale Strahleindringtiefe gemäß Gl. (3.16) verwendet werden. Die Starthöhe des Blasenwachstums kann für Düsenböden und Glockenböden praktisch mit der Höhe des Anströmbodens gleichgesetzt werden.

In Abb. 3.7 und 3.8 ist die spezifische Austauschfläche als Funktion der Wirbelschichthöhe aufgetragen. Der Einfluß des Anströmbodens zeigt sich besonders gravierend bei flachen Wirbelschichten, wird jedoch zu hohen Schichten hin geringer.

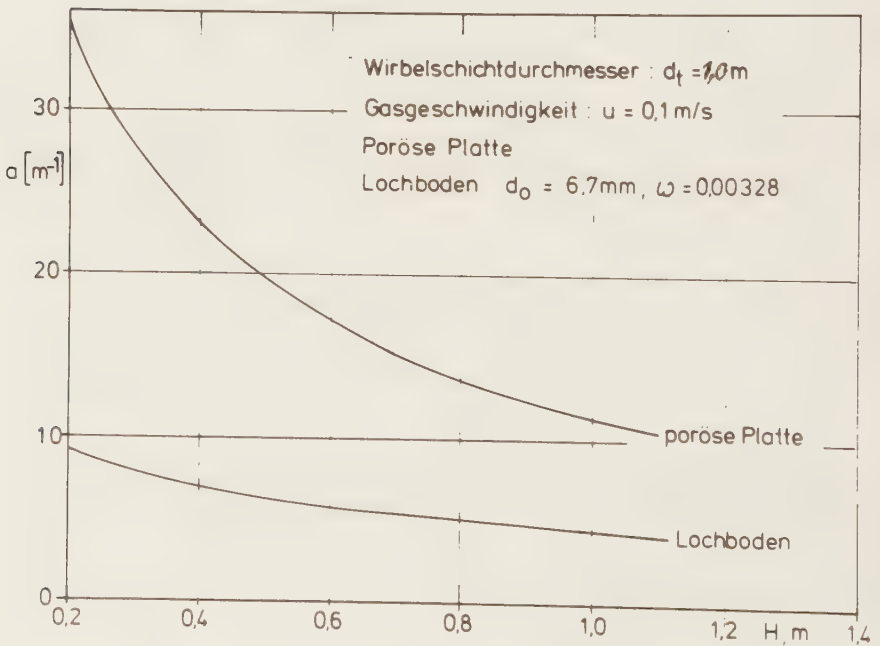


Abb. 3.7: Einfluß der Gasverteilerkonstruktion auf die spezifische Austauschfläche a

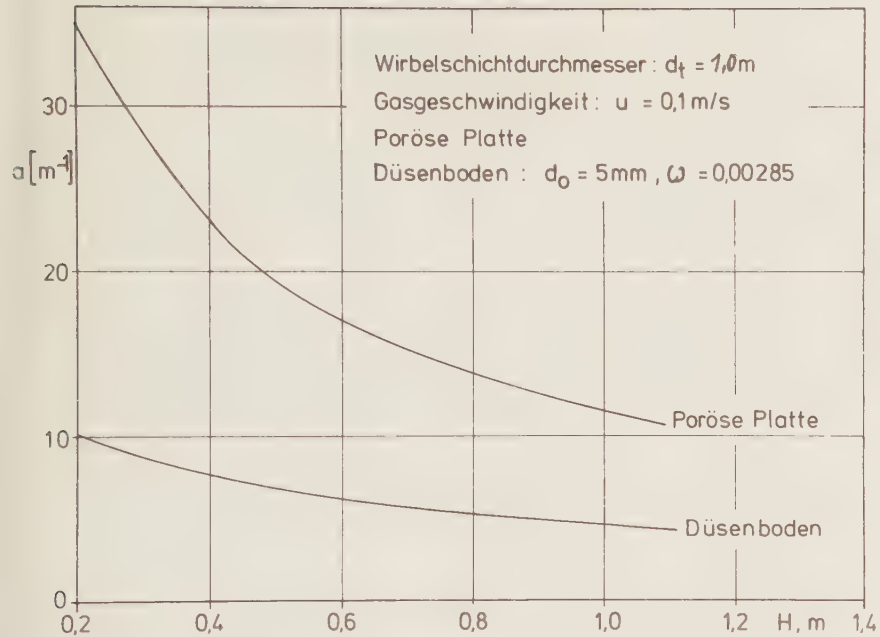


Abb. 3.8: Einfluß der Gasverteilerkonstruktion auf die spezifische Austauschfläche a

Abb. 3.9 und Abb. 3.10 zeigen den Einfluß von Wirbelschichtdurchmesser und Anströmgeschwindigkeit. Mit zunehmender Gasgeschwindigkeit u nimmt die spezifische Austauschfläche zu, mit zunehmendem Reaktordurchmesser nimmt die spezifische Austauschfläche ab.

Letzteres läßt sich damit begründen, daß die Blasen in Wirbelschichten großer Durchmesser aufgrund der Bildung von Schwärmen und Ketten schneller durch die Schicht steigen und somit nur eine geringe Austauschfläche je Reaktorvolumeneinheit zur Verfügung steht.

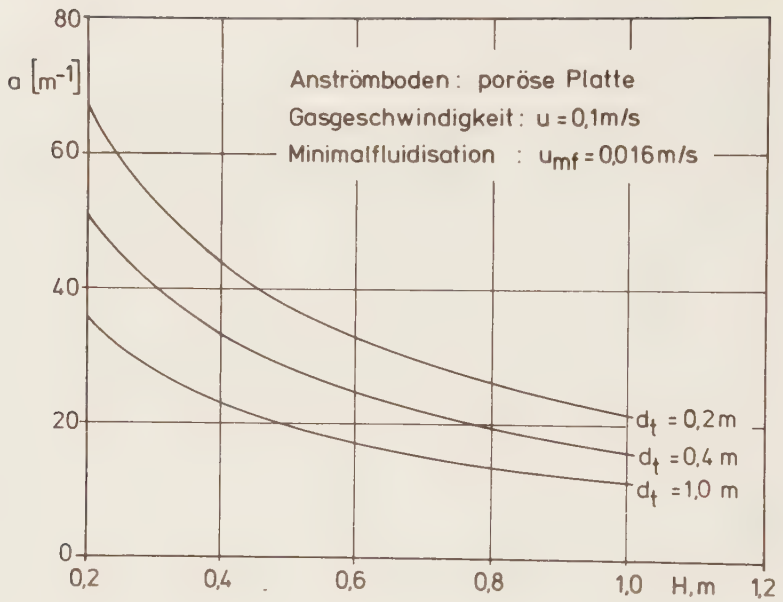


Abb. 3.9: Einfluß des Wirbelschichtdurchmessers auf die spezifische Austauschfläche a

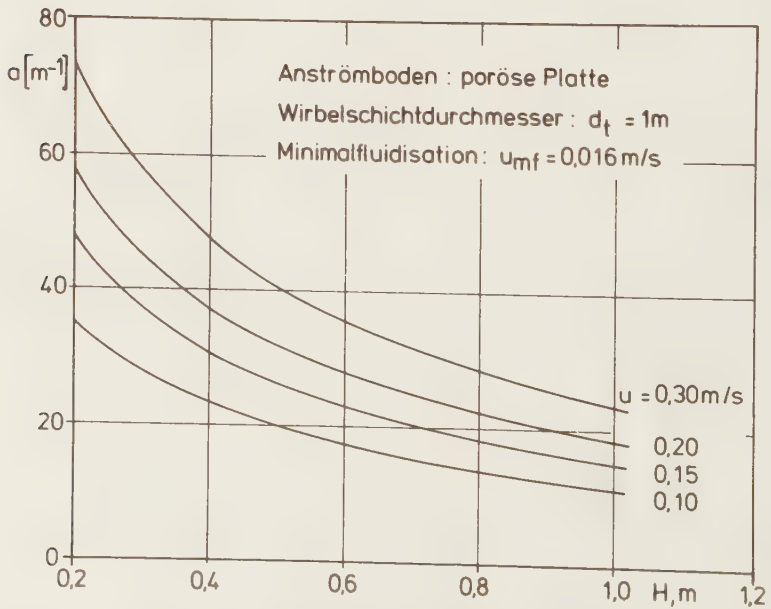


Abb. 3.10: Einfluß der Anströmgeschwindigkeit auf die spezifische Stoffaustauschfläche a

3.4 Bilanzierung am differentiellen Höhenelement

Für die Anwendung des erweiterten Zweiphasenmodells auf die mathematische Beschreibung des Gasverteilereinflusses in Wirbelschichtreaktoren wird im folgenden die Bilanzierung am differentiellen Höhenelement des Reaktors beschrieben.

Die Bilanzierung für den stationären Betrieb im Fall großer Hattazahlen, der eine Berücksichtigung der Filmbeschleunigung erfordert, ist in Abschnitt 2.3 bereits beschrieben. Hier wird die Bilanzierung für den speziellen Fall kleiner Hattazahlen dabei aber für instationären Betrieb durchgeführt. Es sind folgende Annahmen getroffen:

1. In der Blasenphase wird der Gasvolumenstrom $(u - u_{mf}) A_t$ in Kolbenströmung transportiert, der restliche Gasstrom befindet sich in der Suspensionsphase.
2. Der Suspensionsphase ist eine Axialvermischung des Gases, gekennzeichnet durch den Axialdispersionskoeffizienten D_{ax} , überlagert.
3. Der Stoffaustausch zwischen den Phasen wird durch den flächenbezogenen Austauschkoefizienten α und die spezifische Phasengrenzfläche a beschrieben.
4. Die heterogen katalytische Reaktion findet nur in der Suspensionsphase statt. Die Reaktionsgeschwindigkeit wird durch einen Ansatz erster Ordnung in bezug auf die Konzentration des Reaktanden in der Suspensionsphase beschrieben.

Die für Suspensionsphase und feststofffreie Phase getrennt durchgeführte Bilanzierung ist in der Abb. 3.11 für die Suspensionsphase schematisch dargestellt, wobei $(1 - \epsilon_{bj}) \epsilon_{mf}$ der Volumenanteil des Suspensionsphasengases ist.

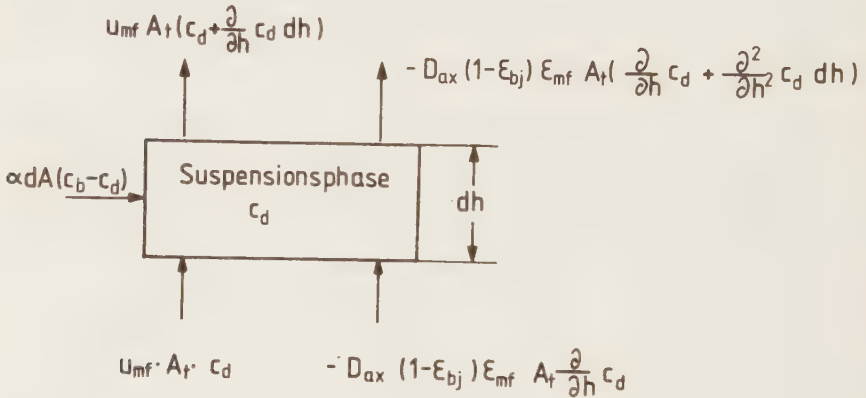


Abb. 3.11: Bilanzierung am differentiellen Volumenelement der Suspensionsphase

Die heterogen katalytische Reaktion erster Ordnung in der Suspension wird durch die Stoffänderungsgeschwindigkeit

$$r_A = -k (1 - \epsilon_{bj}) A_t dh \cdot c_d \quad (3.26)$$

beschrieben.

Die Bilanz der Komponente in der Suspensionsphase gemäß dem Ansatz [43]

$$\left(\begin{array}{c} \text{Molzahländerung} \\ \text{pro Zeit} \end{array} \frac{\partial n}{\partial t} \right) = \left(\begin{array}{c} \text{eintretende} \\ \text{Mole} \\ \text{pro Zeit} \end{array} \right) - \left(\begin{array}{c} \text{austretende} \\ \text{Mole} \\ \text{pro Zeit} \end{array} \right) - \left(\begin{array}{c} \text{wegreagierende} \\ \text{Mole} \\ \text{pro Zeit} \end{array} \right)$$

ergibt nach Übergang auf die Konzentration c_d des Reaktanden in der Suspensionsphase mit

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial c_d}{\partial t} (1 - \epsilon_{bj}) \epsilon_{mf} \cdot A_t dh$$

die Bilanzierungsgleichung:

$$\begin{aligned} & - u_{mf} \cdot A_t \frac{\partial c_d}{\partial h} dh - \left[- D_{ax} (1 - \epsilon_{bj}) \epsilon_{mf} A_t \frac{\partial^2}{\partial h^2} c_d dh \right] + \\ & + \alpha \cdot dA (c_b - c_d) - k (1 - \epsilon_{bj}) A_t dh \cdot c_d = (1 - \epsilon_{bj}) \epsilon_{mf} A_t dh \frac{\partial c_d}{\partial t} \end{aligned} \quad (3.27)$$

Da für den Anteil dA der Stoffaustauschfläche im Bilanzelement $dA = a A_t dh$ eingesetzt werden kann, ergibt sich die Bilanz der Suspensionsphase mit:

$$\begin{aligned} & \frac{\partial c_d}{\partial t} + \frac{u_{mf}}{(1 - \epsilon_{bj}) \epsilon_{mf}} \frac{\partial c_d}{\partial h} - D_{ax} \frac{\partial^2}{\partial h^2} c_d - \frac{\alpha \cdot a}{(1 - \epsilon_{bj}) \epsilon_{mf}} (c_b - c_d) + \\ & + \frac{k}{\epsilon_{mf}} c_d = 0 \end{aligned} \quad (3.28)$$

Die Bilanzierung am differentiellen Volumenelement der feststofffreien Phase ist in Abb. 3.12 veranschaulicht:

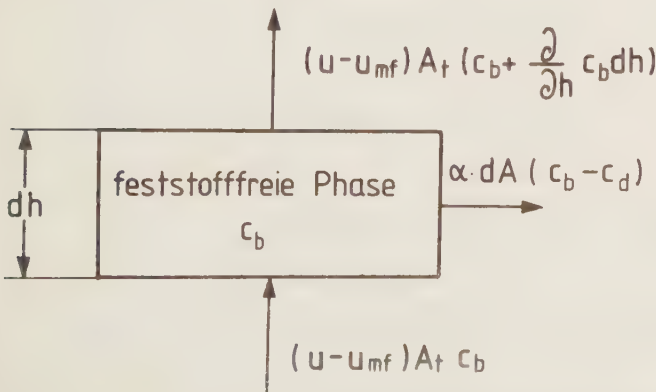


Abb. 3.12: Bilanzierung am differentiellen Volumenelement der feststofffreien Phase

Die Bilanz für eine Komponente gemäß dem Ansatz

$$\left(\begin{array}{c} \text{Molzahländerung} \\ \text{pro Zeit} \end{array} \frac{\partial n}{\partial t} \right) = \left(\begin{array}{c} \text{eintretende} \\ \text{Mole} \\ \text{pro Zeit} \end{array} \right) - \left(\begin{array}{c} \text{austretende} \\ \text{Mole} \\ \text{pro Zeit} \end{array} \right)$$

und Übergang auf die Reaktandenkonzentration in der feststofffreien Phase mit

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial c_b}{\partial t} A_t \epsilon_{bj} dh$$

ergibt die Bilanzgleichung:

$$A_t dh \epsilon_{bj} \frac{\partial c_b}{\partial t} = - (u - u_{mf}) A_t \frac{\partial c_b}{\partial h} dh - \alpha dA (c_b - c_d) \quad (3.29)$$

Nach Umformung mit $dA = a \cdot A_t \cdot dh$ folgt hieraus:

$$\frac{\partial c_b}{\partial t} + \frac{(u - u_{mf})}{\epsilon_{bj}} \frac{\partial c_b}{\partial h} + \frac{\alpha a}{\epsilon_{bj}} (c_b - c_d) = 0 \quad (3.30)$$

Mit Einführung der dimensionslosen Größen:

$$\zeta = \frac{h}{H} \quad \text{dimensionslose Höhe über dem Boden} \quad (3.31)$$

$$\theta = \frac{t (u - u_{mf})}{H \epsilon} \quad \text{dimensionslose Zeit} \quad (3.32)$$

$$N_\alpha = \frac{\alpha a H}{u - u_{mf}} \quad \text{Anzahl Stoffaustauscheinheiten} \quad (3.33)$$

$$N_r = \frac{k (1 - \epsilon_{bj}) H}{u - u_{mf}} \quad \text{Anzahl Reaktionseinheiten} \quad (3.34)$$

$$N_E = \frac{(u - u_{mf}) H}{D_{ax} (1 - \epsilon_{bj}) \epsilon_{mf}} \quad \text{Anzahl Dispersionseinheiten} \quad (3.35)$$

und Verwendung der Volumenkonzentrationen C_b , C_d der betrachteten Komponente in feststofffreier Phase und Suspensionsphase folgt das Differentialgleichungssystem

feststofffreie Phase:

$$\frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon} \frac{\partial C_b}{\partial \theta} + \frac{\partial C_b}{d\zeta} + N\alpha (C_b - C_d) = 0 \quad (3.36)$$

Suspensionsphase:

$$\frac{(1 - \epsilon_{bj}) \epsilon_{mf}}{\epsilon} \frac{\partial C_d}{\partial \theta} + \frac{u_{mf}}{u - u_{mf}} \frac{\partial C_d}{\partial \zeta} - \frac{1}{N_E} \frac{\partial^2 C_d}{\partial \zeta^2} - N\alpha (C_b - C_d) + N_r C_d = 0 \quad (3.37)$$

4. Untersuchung des Stoffaustauschverhaltens einer Wirbelschicht mit Hilfe von Verweilzeitverteilungsmessungen

Das im vorhergehenden Kapitel dargestellte Modell zur Beschreibung des Stoffaustausch- und Reaktionsverhaltens im Wirbelschichtreaktor bei Verwendung technischer Gasverteiler soll im folgenden durch Überprüfung der hierfür getroffenen Modellannahmen bestätigt werden.

Eine weitverbreitete Methode in der Reaktionstechnik [43] ist die Durchführung von Verweilzeitverteilungsmessungen mit Hilfe von Tracersubstanzen. Der hierfür benötigte Versuchsaufwand ist im Vergleich zur Durchführung chemischer Reaktionen geringer. Es sind für Verweilzeitverteilungsmessungen in den meisten Fällen weder besondere Versuchsbedingungen (Temperatur, Druck, Konzentration) noch besonders aufwendige Analysevorschriften einzuhalten.

In dieser Arbeit wird die Überprüfung des vorgeschlagenen Modells für die mathematische Beschreibung des Gasverteilereinflusses nach folgendem Konzept vorgenommen:

1. Es wird eine Lösung des Differentialgleichungssystems für den instationären Fall gesucht, so daß eine Interpretation von Verweilzeitverteilungsmessungen möglich ist.
2. Durchführung von Tracergasverweilzeitbestimmungen an mit unterschiedlichen Gasverteilern angeströmten Wirbelschichten.
3. Durch Berechnen der strömungsmechanischen Kenngrößen Gasvolumenanteil der feststofffreien Phase ϵ_{bj} und spezifische Austauschfläche a aus den im vorhergehenden Kapitel entwickelten Korrelationen kann aus einer Messung der Verweilzeitverteilungen nach Gl. (4.6) der Stoffaustauschkoeffizient α für das Wirbelschichtsystem bestimmt werden.
4. Überprüfen der Modellannahme eines einheitlichen Stoffaustauschkoeffizienten für Boden- und Blasenzone, durch Vergleich der an mit unterschiedlichen Gasverteilern ausgerüsteten Wirbelschichten ermittelten α -Werte.

4.1 Lösung des Differentialgleichungssystems für Verweilzeitverteilungsversuche

Bei Wirbelschichtreaktoren kommen für Verweilzeitverteilungsmessungen im wesentlichen zwei Methoden in Frage:

1. Die Aufgabe eines Tracergas-Stufenimpulses am Wirbelschichteingang und Messung des Antwortsignals an der Wirbelschichtoberfläche.
2. Die Aufgabe eines Tracergas-Stoßimpulses (Diracimpuls) am Wirbelschichteingang und Registrierung des Antwortsignals an der Wirbelschichtoberfläche.

Die Lösung des Differentialgleichungssystems (3.36-37) für einen Stufenimpuls als Eingangssignal ist bereits von Anzelius 1926 für Wärmeübergang im durchströmten Festbett veröffentlicht worden [44]. Schwierigkeiten bei der Auswertung der Meßergebnisse durch Anpassung von theoretischer und experimenteller Antwortfunktion (siehe Anhang 9.2) führten dazu, daß van Deemter [31] das Differentialgleichungssystem (3.36-37) für einen Dirac-Impuls nach einer von van der Laan [45] angegebenen Methode löste. Er führte hierfür die Vereinfachung ein, daß in der Suspensionsphasenbilanz der Term $(u_{mf}/(u-u_{mf}))\partial C_d/\partial \zeta$ vernachlässigt werden kann. Diese Vereinfachung beruht auf der Beobachtung, daß für technische Anwendungen $u_{mf} \ll (u-u_{mf})$ gilt. Mit dieser Vereinfachung folgt bei Abwesenheit einer chemischen Reaktion aus Gl. (3.36) und (3.37) das folgende System von partiellen Differentialgleichungen:

$$\frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon} \frac{\partial C_b}{\partial \theta} + \frac{\partial C_b}{\partial \zeta} + N_\alpha (C_b - C_d) = 0 \quad (4.1)$$

$$\left(1 - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon}\right) \frac{\partial C_d}{\partial \theta} - \frac{1}{N_E} \frac{\partial^2 C_d}{\partial \zeta^2} - N_\alpha (C_b - C_d) = 0 \quad (4.2)$$

Die Lösung des Differentialgleichungssystems mittels Laplace Transformation erlaubt, die entsprechenden Momente der gesuchten Funktion zu bestimmen, ohne die Funktion selbst explizit kennen zu müssen (siehe Anhang 9.3).

Die mit der Reaktorverweilzeit normierte Varianz der Antwortfunktion an der Wirbelschichtoberfläche σ^2 ergibt sich damit zu [31]

$$\sigma^2 = \frac{2}{N_\alpha} \left(1 - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon} \right)^2 + \frac{2}{N_E} + \frac{2q}{N_E^2} \frac{\left[\exp \frac{N_\alpha (q-1)}{2} - 1 \right] \left[\exp \frac{-N_\alpha (q+1)}{2} - 1 \right]}{\exp \left[\frac{N_\alpha (q-1)}{2} \right] - \exp \left[-\frac{N_\alpha (q+1)}{2} \right]} \quad (4.3)$$

$$\text{mit } q = \sqrt{1 + 4 \frac{N_E}{N_\alpha}}$$

Speziell für den hier vorliegenden Fall der flachen Wirbelschicht kann gezeigt werden (siehe Anhang 9.4), daß mit hinreichend genauer Näherung gilt:

$$\sigma^2 = \frac{2}{N_\alpha} \left(1 - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon} \right)^2 \quad (4.4)$$

Damit wird eine wesentliche Vereinfachung der Bestimmungsgleichung für die Varianz σ^2 des Antwortsignals auf einen Diracimpuls erzielt, da hierfür die genaue Kenntnis der Anzahl der Dispersionseinheiten N_E nicht mehr erforderlich ist.

4.2 Auswertekonzept

Durch Einsetzen der Definitionsgleichung von N_α , Gl. (2.11), mit

$$N_\alpha = \frac{\alpha \cdot a \cdot H}{u - u_{mf}}$$

in Gl. (4.4) folgt für die normierte Varianz σ^2 des Antwortsignals am Reaktorausgang:

$$\sigma^2 = \frac{2 (u - u_{mf})}{\alpha \cdot a \cdot H} \left(1 - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon} \right)^2 \quad (4.5)$$

Bei gegebenem Betriebszustand, gekennzeichnet durch Anströmgeschwindigkeit u , Minimalfluidisationsgeschwindigkeit u_{mf} und Höhe der expandierten Wirbelschicht H können die strömungsmechanisch bestimmten Kenngrößen spezifische Austauschfläche a und Gasvolumenanteil der feststofffreien Phase ϵ_{bj} berechnet werden. Durch eine Messung von σ^2 kann dann aus Gl.(4.6) der Stoffaustauschkoeffizient α ermittelt werden.

$$\alpha = \frac{2(u - u_{mf})}{\sigma^2 \cdot a \cdot H} \left[1 - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon} \right]^2 \quad (4.6)$$

Die normierte Varianz σ^2 ist gemäß der Additionsregel für Signalantworten von in Serie geschalteten Strömungsbereichen definiert als Differenz der Varianzen σ_t^2 der Signale am Reaktoreingang und Reaktorausgang, bezogen auf das Quadrat der mittleren Gasverweilzeit zwischen diesen Grenzen [43]. Bestimmt werden muß demnach das Tracergassignal am Reaktoreingang, in Abb. 4.1 bezeichnet mit Index "0" und das Tracergassignal am Reaktorausgang, hier bezeichnet mit Index "1".

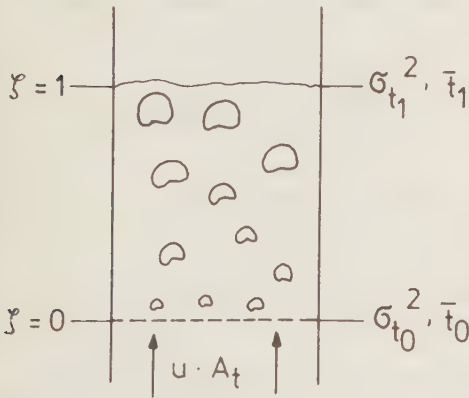


Abb. 4.1: Bilanzgrenzen für die Bestimmung der Verweilzeitverteilungsfunktionen in der Wirbelschicht

Varianz σ_t^2 und mittlere Verweilzeit $\bar{t}$ an den Bilanzgrenzen (Abb. 4.1) können über die entsprechenden Momente der am Reaktoreingang und Reaktorausgang ermittelten Tracersignale berechnet werden, mit:

$$\bar{t} = \frac{M_1}{M_0} \quad (4.7)$$

$$\sigma_t^2 = \frac{M_2}{M_0} - \left(\frac{M_1}{M_0} \right)^2 \quad (4.8)$$

Die Momente M_k sind dabei definiert durch

$$M_k = \int_{t=0}^{\infty} t^k C \, dt \quad (4.9)$$

C bezeichnet die zeitabhängige Tracerkonzentration.

$$\text{Mit } \sigma^2 = \frac{\sigma_t^2}{\bar{t}^2} = \frac{\sigma_{t_1}^2 - \sigma_{t_0}^2}{(\bar{t}_1 - \bar{t}_0)^2} \quad (4.10)$$

kann nun gemäß Gl. (4.6) der Stoffaustauschkoeffizient α berechnet werden.

4.3 Versuchsaufbau

Für die Durchführung von Verweilzeitverteilungsmessungen an einem Wirbelschichtreaktor mit halbtechnischen Abmessungen sind folgende Forderungen an die Versuchsanlage zu stellen:

1. Durchsatz und Temperatur des Fluidisiertgases müssen mit hoher Genauigkeit regelbar sein.
2. Der Tracergasimpuls am Reaktoreingang soll dem Dirac-Impuls möglichst nahekommen.
3. Die Probenahme muß entmischungsfrei und repräsentativ über den Querschnitt der Wirbelschicht erfolgen.
4. Die Bestimmung der Tracergaskonzentration der Gasprobe soll möglichst verzögerungsfrei erfolgen.

Der Reaktor besitzt einen Schichtdurchmesser von 1 m und eine gesamte Höhe von 5.5 m. Über dem zylindrischen Teil der Wirbelschicht befindet sich ein erweiterter Freiraum. Durch die Freiraumerweiterung wird der Feststoffaustrag wesentlich herabgesetzt (Abb. 4.6 und 4.7).

Vor einem Austausch des Anströmbodens wird das Fluidisiergut aus der Wirbelschicht pneumatisch in einen Silo gefördert. In gleicher Weise wird der im Falle eines Lochbodens beim An- und Abfahren der Anlage durchrieselnde Feststoff pneumatisch in die Wirbelschicht zurückgefördert. Als Fluidisierungsgas dient Luft, deren Temperierung mittels Wasserkühlung und elektrischer Heizung erfolgt. Der Gasdurchsatz wird mit Hilfe einer Blendenmessung über Bypass geregelt.

Die Entstaubung des aus dem Reaktor austretenden Gases erfolgt durch zwei parallel geschaltete Zykclone sowie mehrere Faserfilter.

Als Fluidisiergut wird Quarzsand mit einem Sauterdurchmesser von $108\ \mu\text{m}$ und einer Dichte von $2630\ \text{kg/m}^3$ der Firma Busch KG, Bayreuth, verwendet (Charakterisierung des Versuchsgutes siehe Anhang 9.5).

Für die Durchführung der Verweilzeitverteilungsversuche wurden die folgenden Gasverteiler eingesetzt:

1. Poröse Platte (Hersteller Fa. Didier Werke AG, Typ Schüler-Filterplatte Flexolith H)
2. Lochboden
Teilung $t_n = 100\ \text{mm}$
Bohrung $d_o = 6.7\ \text{mm}$
freier Flächenanteil $\omega = 0.00328$
3. Schraubenboden mit 19 Schraubendüsen (Abb. 4.3)
Teilung $t_n = 235\ \text{mm}$
Bohrung $d_o = 3.5\ \text{mm}$
freier Flächenanteil $\omega = 0.00125$

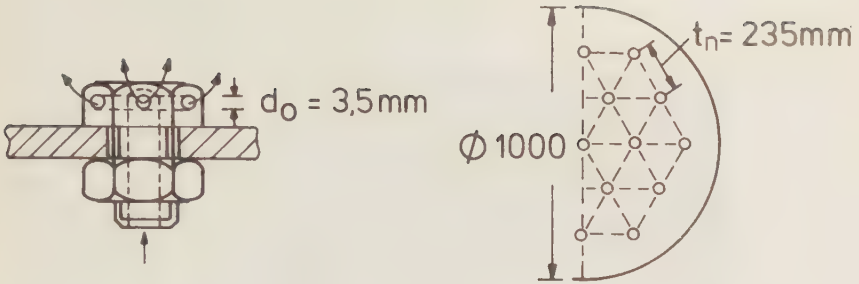


Abb. 4.3: Für Verweilzeitverteilungsversuche verwendeter Schraubenboden

4. Düsenboden mit 19 Düsen (Abb. 4.4 und 4.5)

Teilung $t_n = 235 \text{ mm}$

Bohrung $d_0 = 5 \text{ mm}$

freier Flächenanteil $\omega = 0.00285$

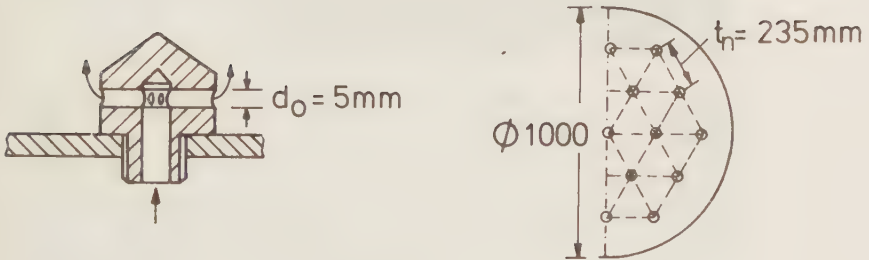


Abb. 4.4: Für Verweilzeitverteilungsversuche verwendeter Düsenboden

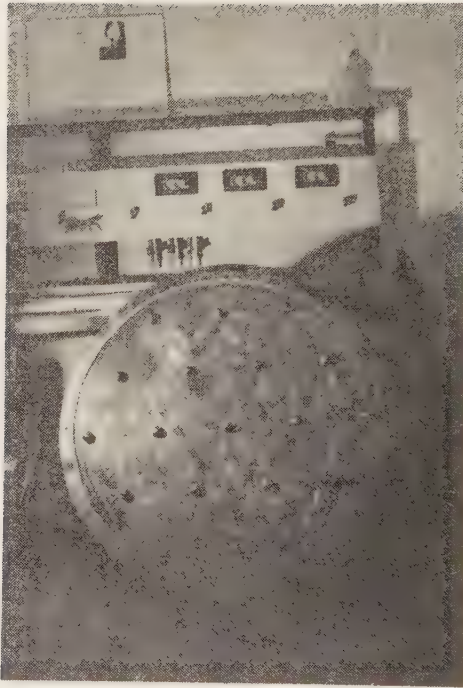


Abb. 4.5: Aufnahme des Düsenbodens

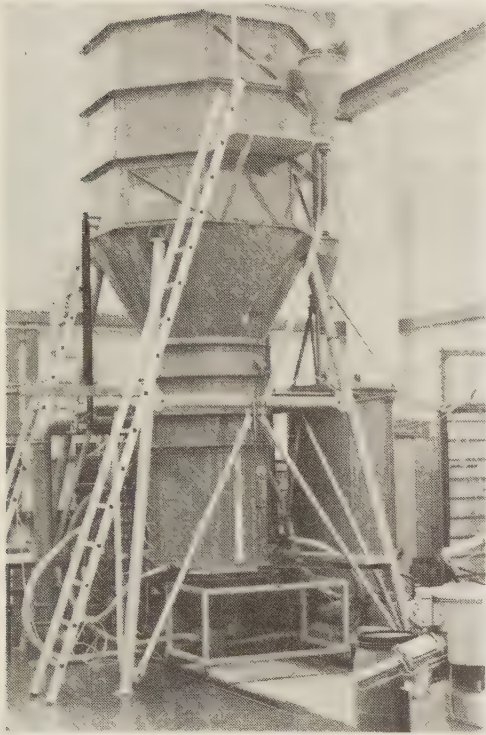


Abb. 4.6: Wirbelschichtanlage

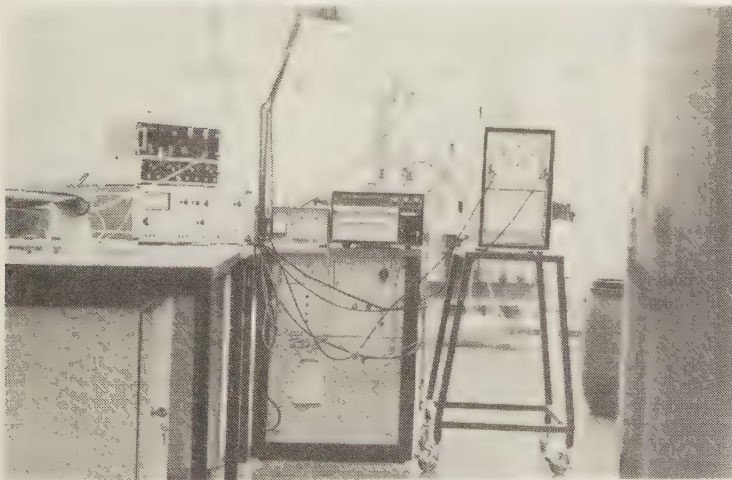


Abb. 4.7: Signalverarbeitung für die Verweilzeitverteilungsversuche

4.3.2 Erzeugung des Eingangssignals für Verweilzeitverteilungsmessungen

Die weitgehende Annäherung eines Dirac-Stoßes durch den Tracergas-Impuls ist nur mit sehr schnell ansprechenden Ventilen möglich. Die in der Versuchsanlage eingesetzten elektromagnetischen Ventile (Hersteller: Bürkert GmbH, Typ 217-A-06, 0-B-R 1/4"-024/-F-000) haben eine Öffnungs- bzw. Schließzeit von etwa 30 ms. Die Steuerung der Ventile erfolgt über einen am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik von H. Schneider entwickelten Taktgeber, der es ermöglicht, unter Vorgabe von Impulsdauer (einstellbar zwischen 70 ms und 2 s) und Abstand zwischen den Impulsen zwei elektromagnetische Ventile parallel zu schalten. Die Tracergaszuführung erfolgt im Anströmrohr unterhalb des Ringverteilers des Anströmbodens.

Als Tracer findet das Edelgas Argon Verwendung, so daß in Verbindung mit dem nichtporösen Fluidisiergut Sand keine Adsorptionseffekte zu berücksichtigen sind [46, 47].

4.3.3 Probenahme und Bestimmung der Tracergaskonzentration

Blasenmessungen von Werther [11] in Wirbelschichten technischer Abmessungen zeigen deutlich, daß der Blasengasstrom über dem Querschnitt der Wirbelschicht ungleich verteilt ist. Diese Ungleichverteilung der Blasenentwicklung ist besonders ausgeprägt bei Anströmung der Wirbelschicht mit technischen Gasverteilern (siehe Abb. 4.8).

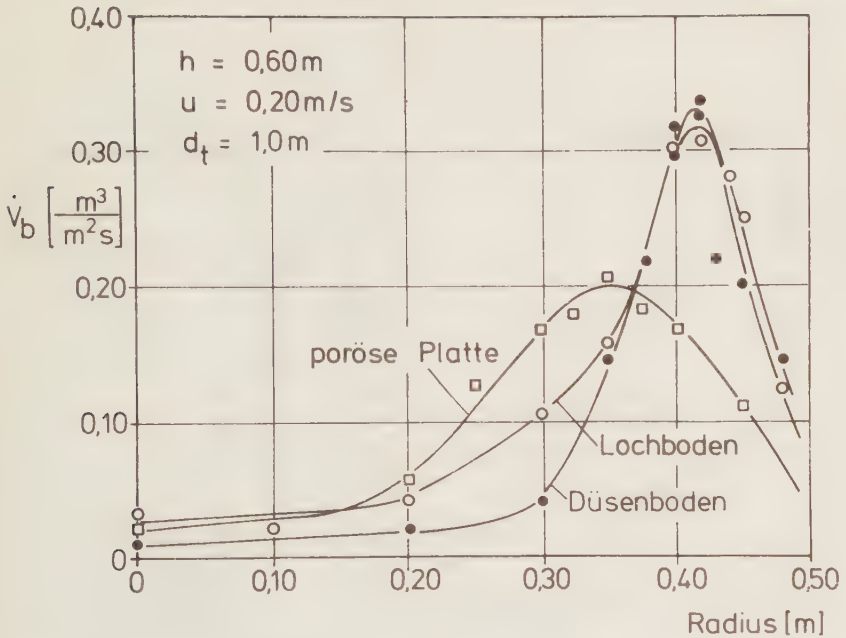


Abb. 4.8: Verteilung des flächenbezogenen Blasengasstroms über dem Wirbelschichtquerschnitt in Abhängigkeit von der Gasverteilung

Um diese Ungleichverteilung des Blasengasstroms über den Wirbelschichtquerschnitt berücksichtigen zu können, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Kapillarsystem, bestehend aus 16 Einzelkapillaren, entwickelt (siehe Abb. 4.9), deren Anordnung über den Wirbelschichtradius aus der Hydrodynamik berechnet werden kann (siehe Anhang 9.6).

Die 16 Einzelproben werden in einer Hauptkapillare zusammengefaßt dem Analysensystem zugeführt. Das Probenahmesystem ist mittels einer staubgeschützten Verstellvorrichtung über die Höhe verfahrbar, sowie um die Wirbelschichtachse drehbar angeordnet.

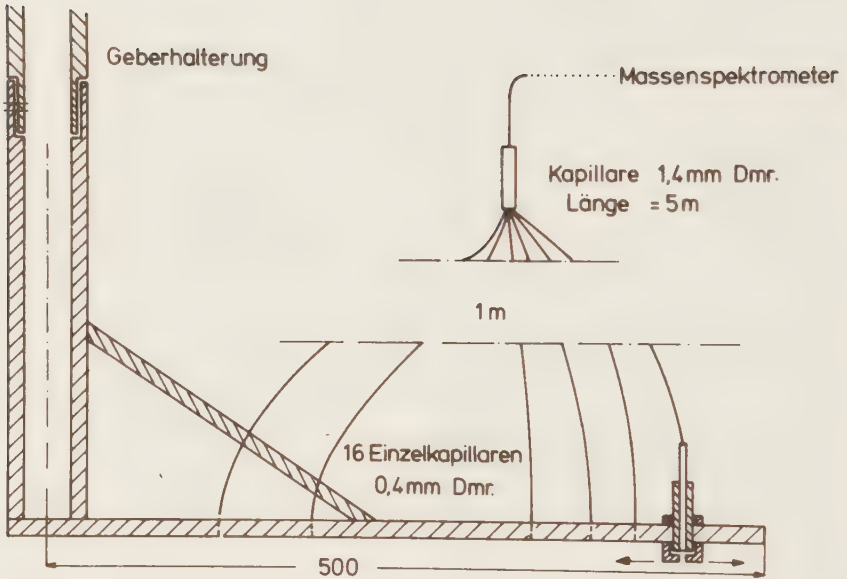


Abb. 4.9: Für die repräsentative Probenahme über den Wirbelschicht-querschnitt entwickeltes Kapillarsystem

Die zu analysierende Gasprobe muß von der Probenahmestelle mit annähernd Atmosphärendruck kontinuierlich und entmischungsfrei in das für die Partialdruckanalyse verwendete Massenspektrometer mit einem Betriebsdruck kleiner 10^{-4} mbar gelangen. Im Druckwandler-System DW 1 (Hersteller: Firma Leybold-Heraeus GmbH) strömt die Gasprobe in einer Kapillare mit niedrigem Leitwert dem beheizbaren Gaseinlaßventil laminar zu (Abb. 4.10). Eine hier angeschlossene Vakuumpumpe sorgt neben der Druckreduzierung für einen raschen Gastransport. Durch Öffnen des Gaseinlaßventils wird ein Teil des zu untersuchenden Gases über eine Glasfritte dem Analysator zugeführt.

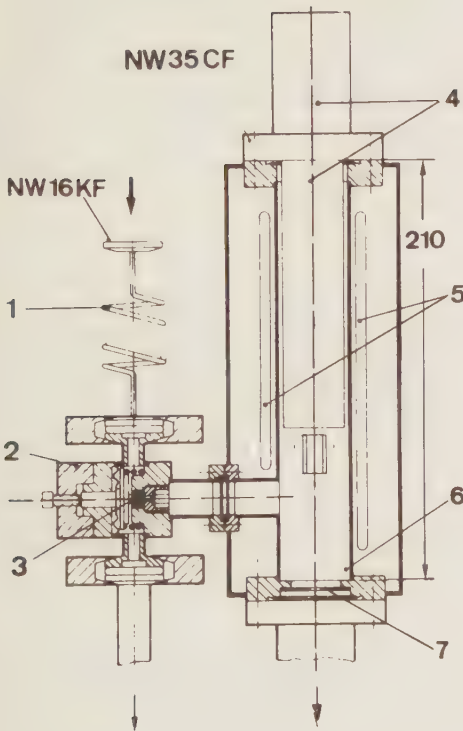


Abb. 4.10: Druckwandler-
system DW 1 des
Analysesystems

- 1) Kapillare
- 2) Gaseinlaßventil
- 3) Glasfritte
- 4) Meßsystem
- 5) Heizvorrichtung
- 6) Meßsystemaufnahme
- 7) Blende

Eine Beheizung des Druckwandlers vermeidet die Verfälschung der Gasanalyse aufgrund von Adsorptions- und Kondensationseffekten.

Die zeitliche Änderung des Tracergaspartialdrucks in der Gasprobe wird mit dem nach dem Quadrupolprinzip arbeitenden Massenspektrometer Q 200 der Firma Leybold-Heraeus GmbH bestimmt. In Abb. 4.11 ist das Schema für Gasprobenahme, Analyse und Signalaufzeichnung dargestellt.

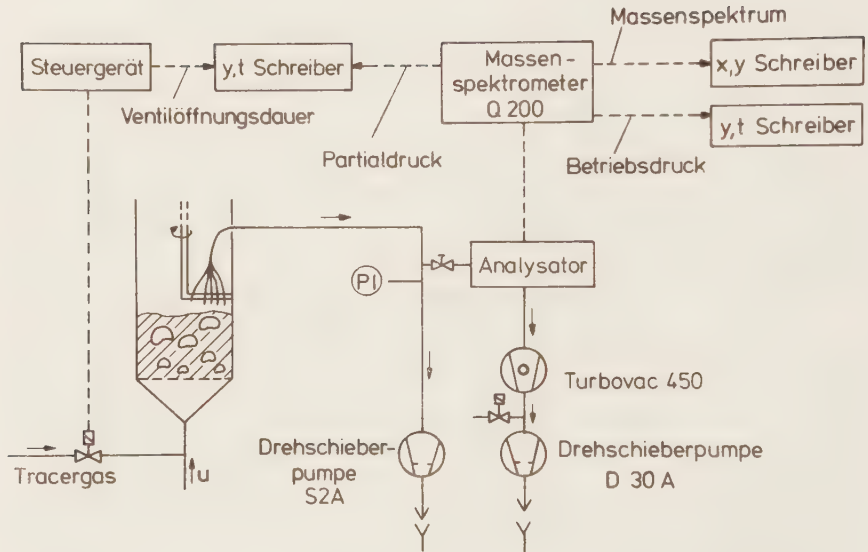


Abb. 4.11: Schema von Gasprobenahme, Analyse und Signalaufzeichnung

Eine Turbomolekularpumpe (Hersteller Firma Leybold-Heraeus GmbH, Typ Turbovac 450) erzeugt das für den Betrieb des Massenanalysegerätes benötigte Vakuum von $p_v < 10^{-4}$ mbar. Das große Saugvermögen der Turbomolekularpumpen, speziell für Kohlenwasserstoffe, vermeidet weitgehend eine Verschmutzung des hochempfindlichen Analysesystems durch in der Fluidisierluft enthaltene Kohlenwasserstoffe.

4.4 Eichmessungen

Die Überprüfung der Funktionsfähigkeit des in 4.3 vorgestellten Meßsystems machten eine Reihe von Eichmessungen erforderlich, die nachstehend im einzelnen beschrieben werden.

4.4.1 Dichtheit des Vakuumsystems

Nach Erreichen des Betriebsdruckes des Massenspektrometers von $p_v < 10^{-4}$ mbar kann durch Aufnahme eines Massenspektrogramms über den gesamten Massenbereich des Analysators (1 - 200 atomic mass units) das Restgas auf störende Komponenten hin überprüft werden. Bei geschlossenem Gaseinlaßsystem können im wesentlichen nur Kohlenwasserstoffe der Pumpen anfallen. Das Vakuumsystem zeigt bei Dichtheit der Anlage eine typisch schnellere Abnahme der schweren gegenüber den leichten Massen [63].

4.4.2 Angabe absoluter Konzentrationen

Für die Bestimmung der Konzentration einer Komponente des Gasgemisches ist die Empfindlichkeit des Massenspektrometers als Gerätekonstante gegeben. Darüber hinaus wird die von der jeweiligen Gasart abhängige Ionisierungswahrscheinlichkeit, wie sie in Tabellen für Ionisations-Manometer vorliegt, benötigt. Da der Edelgasanteil in der Luft bekannt ist, kann z. B. für das Gas Argon direkt ein Eichfaktor, der sowohl Geräteempfindlichkeit als auch Ionisationswahrscheinlichkeit enthält, bestimmt und für die quantitative Angabe der Tracergaskonzentration verwendet werden.

4.4.3 Entmischung im Probenahmesystem

Zur Untersuchung von Entmischungstendenzen des Gases im Kapillar- und Gaseinlaßsystem wurden Tracergasimpulse mit einem Eichgasgemisch, bestehend zu gleichen Teilen aus Helium, Neon, Argon und Kohlendioxid, durchgeführt. Sowohl die mittleren Verweilzeiten zwischen Impulsaufgabe und Signalantwort am Wirbelschichtboden als auch die Standardabweichung der Signale zeigen keine signifikanten Unterschiede zwischen den verschiedenen Gasen. Der Versuch wurde für eine Leerrohrgeschwindigkeit von $u = 0.1$ m/s mit dem Gebersystem direkt über dem Anströmboden bei leerem Bett durchgeführt.

Helium	$\bar{\tau}_0 = 1.90 \text{ s}$	$\sigma_{t,0}^2 = 0.03 \text{ s}^2$
Neon	$\bar{\tau}_0 = 1.95 \text{ s}$	$\sigma_{t,0}^2 = 0.04 \text{ s}^2$
Argon	$\bar{\tau}_0 = 1.91 \text{ s}$	$\sigma_{t,0}^2 = 0.04 \text{ s}^2$
Kohlendioxid	$\bar{\tau}_0 = 1.93 \text{ s}$	$\sigma_{t,0}^2 = 0.03 \text{ s}^2$

4.4.4 Einfluß des Druckes auf die Probenahme

Da das Kapillarsystem zur Probenahme in der Wirbelschicht bei unterschiedlichem Druck an der Kapillarspitze eingesetzt wird - je nachdem ob die Gasprobe am Boden der Wirbelschicht oder an der Wirbelschichtoberfläche entnommen wird - muß untersucht werden, ob diese Druckdifferenz Einfluß auf die Systemverweilzeit nimmt. Systemverweilzeit ist die Verweilzeit zwischen Kapillarspitze und Analysator.

Wie Abb. 4.12 zeigt, ist ein Druckeinfluß im hier relevanten Druckbereich bis 1200 mm Wassersäule nicht gegeben[65]

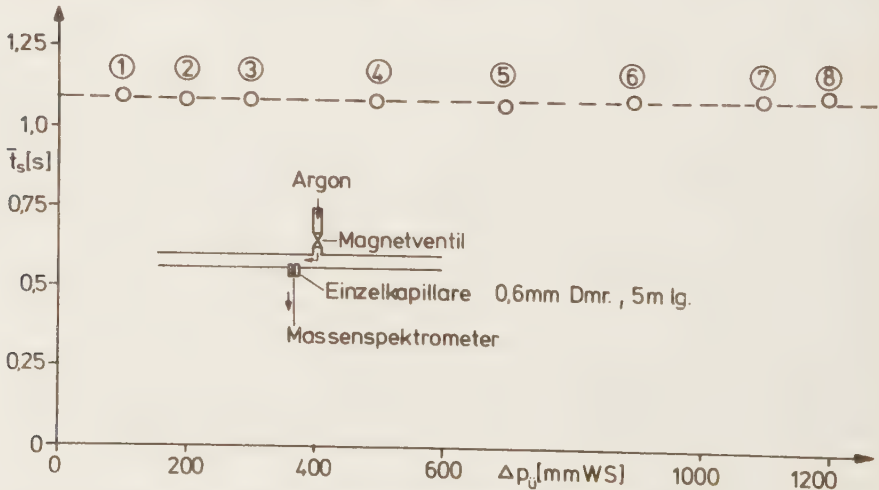


Abb. 4.12: Abhängigkeit der Systemverweilzeit $\bar{\tau}_s$ vom Überdruck Δp_{ij} an der Geberspitze

Die zu den jeweiligen Meßpunkten gehörenden Verweilzeitverteilungen sind in Abb. 4.13 bei gleicher Numerierung als Beispiel gezeigt:

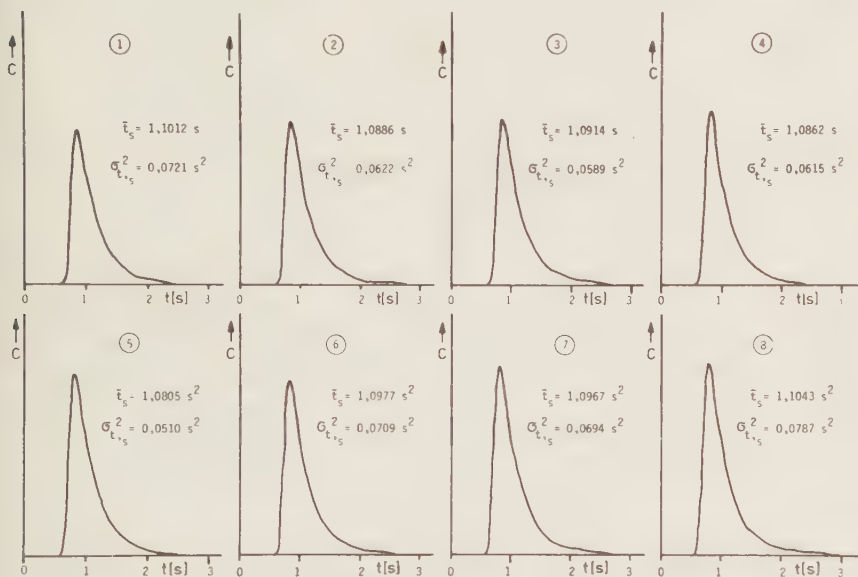


Abb. 4.13: Beispiel der Systemverweilzeitverteilung für bei unterschiedlichem Druck durchgeführte Probenahme

4.4.5 Eigenverweilzeit der Einzelkapillaren

Da das Kapillarsystem zur Gasprobenahme in der Wirbelschicht aus 16 einzelnen Kapillaren zusammengefaßt ist, muß jede einzelne Kapillare auf Eigenverweilzeit und Signalspreizung hin untersucht werden. Wie Abb. 4.14 zeigt, sind zwar geringe Unterschiede in den einzelnen Signalantworten zu bemerken, jedoch keine signifikante Abweichung der Signale untereinander, so daß keine Signalverzerrung durch unterschiedliche Einzelverweilzeiten berücksichtigt werden muß.

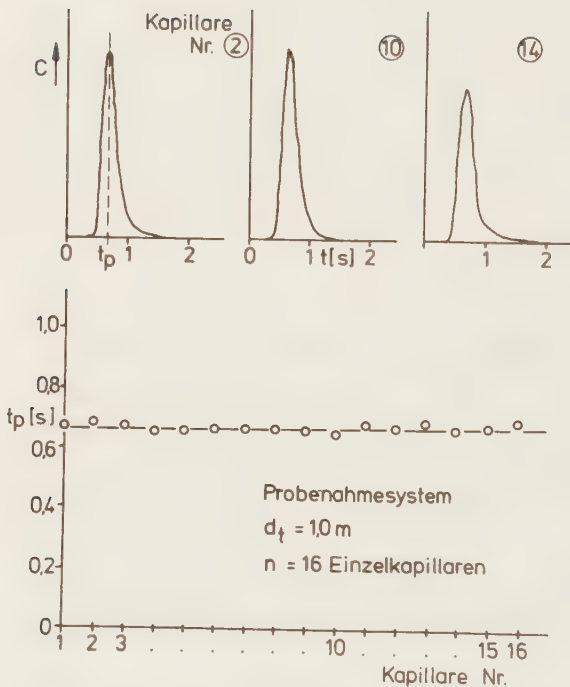


Abb. 4.14:
 Auftragung der Einzel-
 verweilzeiten der
 Kapillaren des Probe-
 nahmesystems

4.4.6 Symmetrie der Tracergassignale über dem Wirbelschichtquerschnitt

Da das Kapillarsystem das Eingangssignal am Wirbelschichtboden und das Antwortsignal an der Wirbelschichtoberfläche nur über einen Radius verteilt aufnimmt, kann eine mögliche Unsymmetrie der Gasströmung - bedingt durch den Verteilerboden oder durch die Wirbelschicht - zu falschen Schlüssen führen

Durch Verfahren einer Einzelkapillare wurde die Radiusabhängigkeit des Eingangssignals untersucht. Wie Abb. 4.15 zeigt, kann dieser Einfluß vernachlässigt werden.

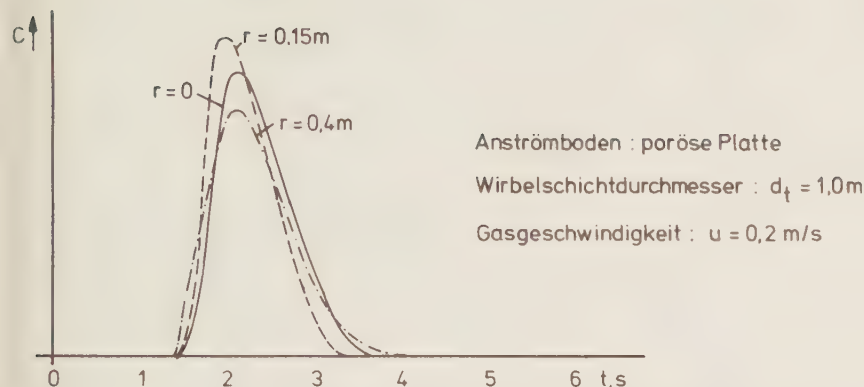


Abb. 4.15: Abhängigkeit des Eingangssignals von der radialen Position der Probenahme

An der Wirbelschichtoberfläche wurde das Gebersystem in drei verschiedenen Positionen eingestellt: in der Grundposition des Gebers (0^0), und jeweils in einer um $+90^0$ und -90^0 um die Wirbelschichtachse gedrehten Stellung. Die Auswertung der Signalantworten in den unterschiedlichen Geberpositionen unter Variation von Anströmgeschwindigkeit und Schichthöhe ließen keine signifikanten Unterschiede für die jeweils bestimmten Werte, mittlere Verweilzeit $\bar{t}_1$ und Varianz $\sigma_{t_1}^2$ der Signalantwort, erkennen. Dies wird durch Auftragen der mittleren Verweilzeit $\bar{t}_1$ (Abb. 4.16) und der Varianz $\sigma_{t_1}^2$ (Abb. 4.17) als Funktion der Geberposition für eine Anströmung mit poröser Platte bei Variation der Gasgeschwindigkeit u veranschaulicht. Weitere Untersuchungen, durchgeführt für die Anströmung mittels Lochboden, Schraubenboden und Düsenboden, lassen ebenfalls keine Unsymmetrie der Wirbelschichtströmung erkennen [68].

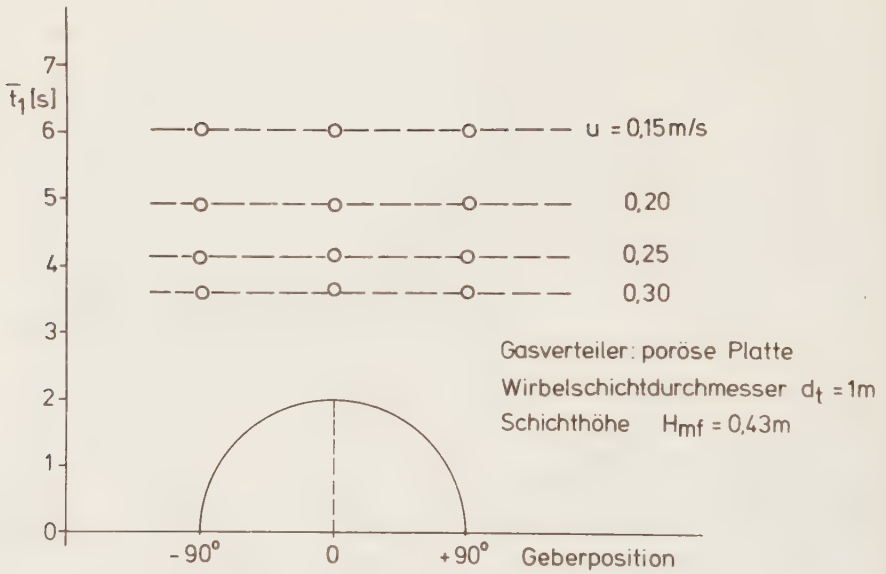


Abb. 4.16: Einfluß der Geberposition an der Wirbelschichtoberfläche auf die mittlere Verweilzeit $\bar{t}_1$ der Signalantwort

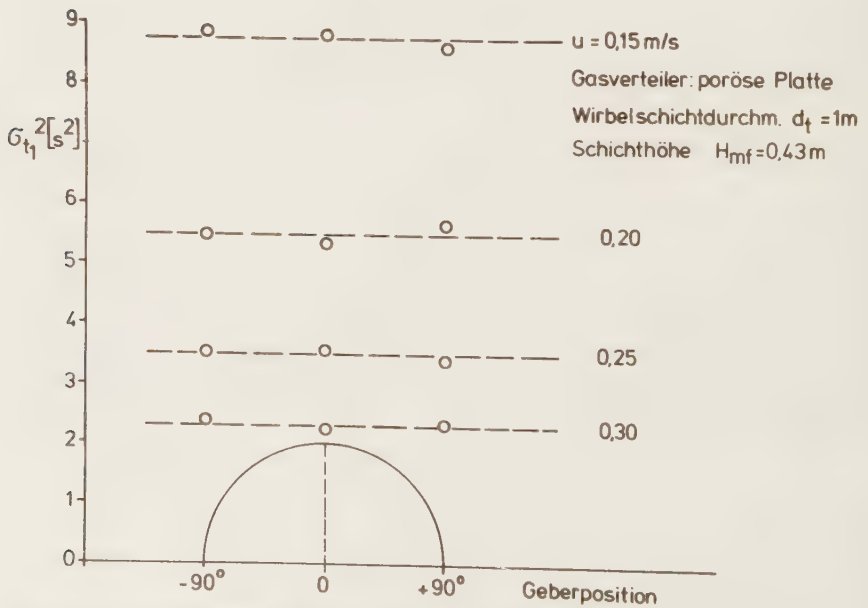


Abb. 4.17: Einfluß der Geberposition an der Wirbelschichtoberfläche auf die Varianz $\sigma_{t_1}^2$ der Signalantwort

4.5 Ergebnisse der Verweilzeitverteilungsmessungen

Die Verweilzeitverteilungsmessungen zur Bestimmung des Stoffaustauschkoeffizienten α wurden nach Eichung des Meßsystems unter Variation folgender Parameter durchgeführt:

- 1) Wirbelschichthöhe bei Minimalfluidisation H_{mf} ,
mit $H_{mf} = 0.32 \text{ m} \dots 0.69 \text{ m}$
- 2) Leerrohrgasgeschwindigkeit u ,
mit $u = 0.10 \text{ m/s} \dots 0.30 \text{ m/s}$
- 3) Gasverteilerkonstruktion, mit poröser Platte, Lochboden, Schraubenboden und Düsenboden (vgl. 4.3.1)

Jede Versuchseinstellung erfordert die Bestimmung der Verweilzeitverteilung am Wirbelschichteingang (Index "0", Kapillargeber unmittelbar oberhalb des Verteilerbodens) und am Ausgang der Wirbelschicht (Index "1", Kapillargeber an der Wirbelschichtoberfläche) (siehe Abb. 4.18).

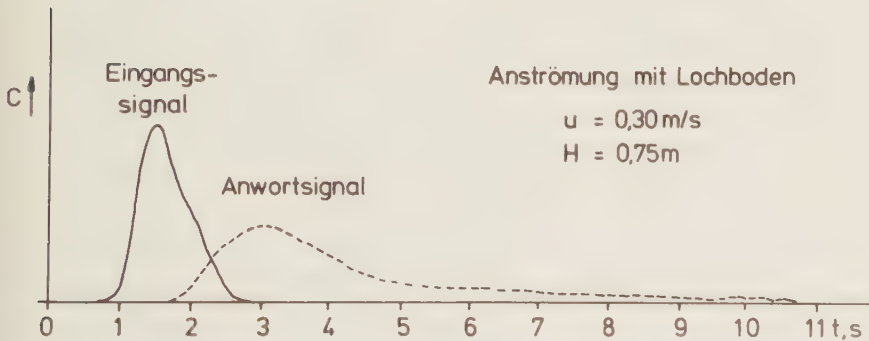


Abb. 4.18: Beispiel für die Verweilzeitverteilungen am Reaktoreingang und -ausgang für Anströmung mit Lochboden

Die Momente M_0 , M_1 und M_2 der Verweilzeitverteilungen lassen sich mittels numerischer Integration nach Gl. (4.9) berechnen. Mit den Gl.n. (4.7) und (4.8) sind aus den Momenten die mittleren Verweilzeiten $\bar{t}_0$ und $\bar{t}_1$ und die Varianzen $\sigma_{t_0}^2$ und $\sigma_{t_1}^2$ bestimmbar. Aus den gegebenen Größen erfolgt dann nach Gl. (4.10) die Berechnung der dimensionslosen Varianz σ^2 . Das Wirbelschichtmodell verknüpft in Gl. (4.6) die Varianz σ^2 mit den strömungsmechanischen Kenngrößen (u , u_{mf} , H , ϵ_{bj} , ϵ , a) und dem Stoffaustauschkoeffizienten α . Zur Berechnung der Parameter ϵ_{bj} und a aus den Einflußgrößen u , u_{mf} und H liegen die Gl.n. (3.15) und (3.25) vor. Der Lückengrad der Wirbelschicht ϵ ist gegeben mit

$$\epsilon = 1 - \frac{M}{\rho_s \cdot H \cdot A_t} \quad (4.11)$$

mit M der Masse des Fluidisiergutes.

Für jede Versuchseinstellung wurde nach Gl. (4.6) ein Zahlenwert des Stoffübergangskoeffizienten α berechnet. Je Versuchseinstellung wurden 30 Verweilzeitverteilungen durchgeführt und ausgewertet. Die Ergebnisse sind im Anhang 9.9 zahlenmäßig und in Abb. 4.19 graphisch dargestellt.

Wie die Darstellung der Versuchsergebnisse in Abb. 4.19 zeigt, ist keine signifikante Abhängigkeit des Stoffaustauschkoeffizienten α von Gasgeschwindigkeit, Betthöhe und Bodentyp zu erkennen. Der Mittelwert aller gemessenen Stoffaustauschkoeffizienten ist $\bar{\alpha} = 0.0089$ m/s.

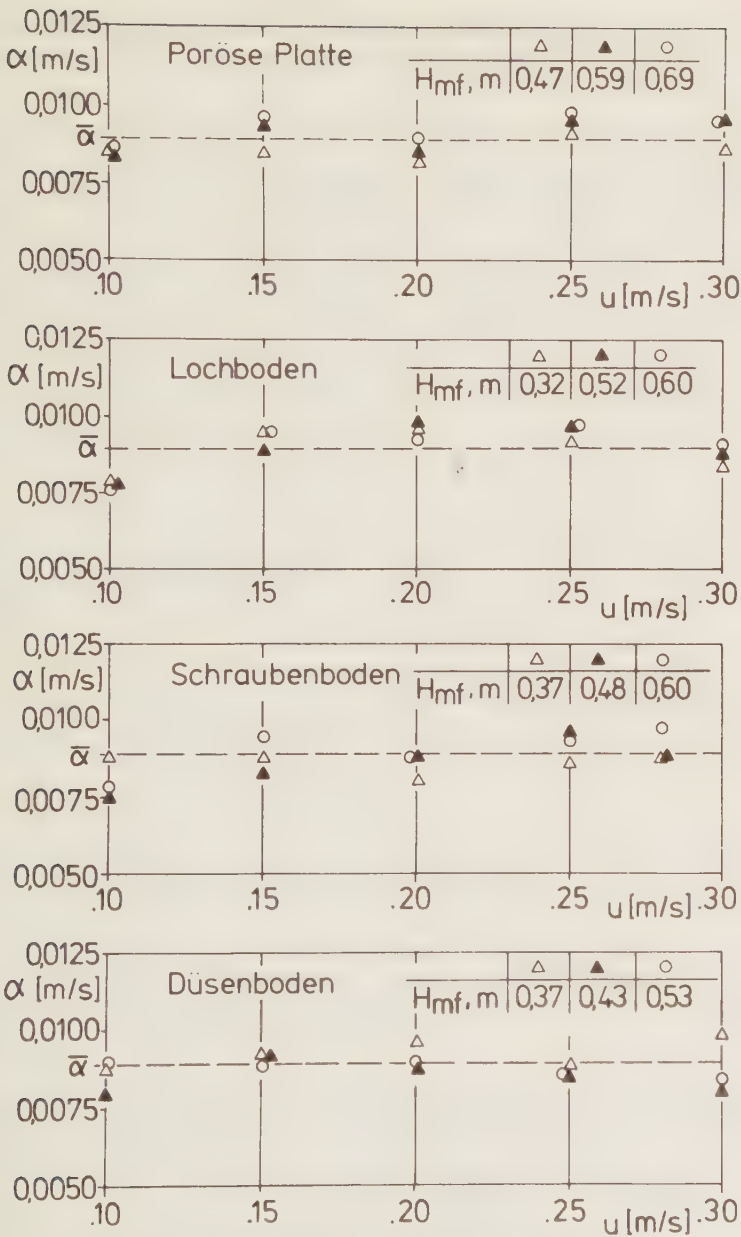


Abb. 4.19: Ergebnisse der Verweilzeitverteilungsversuche, Stoffaustauschkoeffizient α als Funktion von Anströmgeschwindigkeit u und Wirbelschichthöhe bei Minimalfluidisation H_{mf} für unterschiedliche Gasverteiler

Die bei der Durchführung der Verweilzeitverteilungsmessungen gewählten unterschiedlichen Versuchseinstellungen bedeuten:

1. Es wurde die Stoffaustauschfläche variiert
2. Es wurde das Verhältnis von Stoffaustauschfläche in der Bodenzone zu Stoffaustauschfläche in der Blasenzone variiert.

Trotzdem ist keine signifikante Veränderung des Stoffaustauschkoeffizienten α mit den Versuchsbedingungen zu erkennen. Dies läßt die Schlußfolgerung zu, daß die Annahme eines einheitlichen Stoffaustauschkoeffizienten für Blasen- und Bodenzone, die dem in dieser Arbeit entwickelten Modell zur Beschreibung des Gasverteilereinflusses bei Wirbelschichtreaktoren zugrunde liegt, gerechtfertigt ist.

5. Nachprüfung der aus Verweilzeitverteilungsversuchen gewonnenen Ergebnisse durch eine Modellreaktion im Wirbelschichtreaktor

Die Ergebnisse der Verweilzeitverteilungsversuche zeigen, daß die Annahme eines einheitlichen Stoffaustauschkoeffizienten für die gesamte Wirbelschicht, d.h. für Blasenzone und Bodenzone gerechtfertigt ist. Da dieses Ergebnis jedoch im Widerspruch zu dem von Behie und Bergougnou [9] postulierten erhöhten Stoffübergang in der Bodenzone (siehe Kap. 2.4) steht, erscheint eine Nachprüfung durch eine weitere Meßmethode angebracht.

5.1 Meß- und Auswertungskonzept

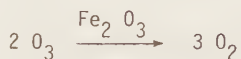
Es ist naheliegend, diese Nachprüfung der aus den Verweilzeitverteilungsmessungen gewonnenen Ergebnisse mit Hilfe einer Modellreaktion an derselben Versuchsanlage bei unveränderten strömungsmechanischen Bedingungen vorzunehmen. Es wird von folgendem Konzept ausgegangen:

1. Aus den Betriebsdaten (u , u_{mf} , d_t , H) können die strömungsmechanischen Kennwerte spezifische Stoffaustauschfläche a , Volumenanteil des Gases in der feststofffreien Phase ϵ_{bj} und das Verhältnis ϕ von Film- zu Suspensionsvolumen ermittelt werden.
2. Aus den Verweilzeitverteilungsmessungen ist der Stoffaustauschkoeffizient α bekannt und damit die Zahl N_α der Stoffaustauscheinheiten berechenbar.
3. Aus Messungen am Festbettreaktor ist die Reaktionskinetik bestimmbar und damit die Hattazahl zu berechnen.
4. Mit Kenntnis der Größen ϕ , N_α und Ha kann nach Gl. (2.10) der Umsatz des Wirbelschichtreaktors berechnet werden zu

$$X = 1 - \exp \left[- \frac{(\phi^{-1} - 1) Ha + \tanh Ha}{(\phi^{-1} - 1) Ha \tanh Ha + 1} Ha N_\alpha \right] \quad (5.1)$$

5. Vergleich des experimentell bestimmten Umsatzes mit der Rechnung.

Als Modellreaktion wurde der katalytische Ozonzerfall an Eisenoxid ausgewählt.



Der Auswahl dieser Reaktion für Umsatzmessungen am Wirbelschichtreaktor liegen dabei folgende Kriterien zugrunde:

- a) Der katalytische Ozonzerfall an Eisenoxid ist bereits in einer Vielzahl von Wirbelschichtreaktoruntersuchungen verwendet worden. In der Literatur liegen u. a. Messungen des Stoffaustausches an Einzelblasen in zweidimensionalen Wirbelschichten [48], Versuche an Laborwirbelschichtreaktoren [39, 49, 50] und Untersuchungen des Reaktionsverhaltens bei Maßstabsvergrößerungen [32, 51, 52] vor.
- b) Nach Literaturangabe [53] ist die Reaktionsgeschwindigkeitsgleichung für einen breiten Konzentrationsbereich des Ozons mit einem Ansatz erster Ordnung beschreibbar.
- c) Das bisherige Versuchsgut Sand kann nach Imprägnierung mit Eisenoxid als Katalysator eingesetzt werden. Damit ist sichergestellt, daß für Umsatzbestimmungen und Verweilzeitverteilungsversuche die gleichen strömungsmechanischen Bedingungen gelten.
- d) Die Reaktion läßt sich bei Umgebungsdruck und Temperaturen zwischen 20 und 70⁰ C durchführen, so daß keine aufwendigen Versuchsaufbauten erforderlich sind.
- e) Die Ozonkonzentration ist noch für sehr geringe Werte mittels Chemo-lumineszenz kontinuierlich und sehr genau meßbar.

5.2 Versuchsaufbau

Die Beschreibung des Versuchsaufbaus für Umsatzmessungen am Wirbelschichtreaktor beschränkt sich hier im wesentlichen auf die gegenüber den Verweilzeitverteilungsversuchen veränderten oder neu hinzugefügten Anlagenteile wie Wirbelschichtreaktor, Festbettreaktor, Ozonerzeuger und Ozonanalysator.

5.2.1 Wirbelschichtreaktor

Nach Umbauten für Heizung, Dichtung und Wärmeisolation konnte die in Abschnitt 4.3 beschriebene Wirbelschichtanlage zur Durchführung von Verweilzeitverteilungsversuchen für die Umsatzbestimmung der Ozonzerfallsreaktion verwendet werden. Um den Einfluß der Maßstabsvergrößerung mit untersuchen zu können, wurde neben der Wirbelschicht mit 1 m Durchmesser noch ein Wirbelschichtreaktor mit 0.2 m Durchmesser aufgebaut. Das Schema des Gesamtaufbaus ist in Abb. 5.1 zu sehen. Die Wirbelschicht mit 1 m Durchmesser besitzt eine gesamte Höhe von 5.5 m, die Wirbelschicht mit 0.2 m Durchmesser eine Höhe von etwa 2 m. Die Höhe der Katalysatorschüttung bei Minimalfluidisation H_{mf} ist in beiden Reaktoren $H_{mf} = 0.5$ m. Der mit dem Gasstrom ausgetragene Katalysator wird über ein Abscheidesystem aus Zyklon und Faserfiltern abgetrennt. Die Erwärmung von Reaktionsgas und Katalysatorschüttung erfolgt über in den Gasstrom eingebaute elektrische Heizelemente und mittels Heizband über die Reaktorwandung. Der Reaktorteil ist mit einer Außenisolation versehen. Thermoelemente (Ni-Konstantan) messen die Gastemperatur in der Anströmung sowie die Wirbelschichttemperatur, die Anzeige erfolgt kontinuierlich an einem 12-Kanal-Schreiber (Hersteller Firma Philips, Typ PM 8235). Für die Messungen wurden poröse Platte und Lochboden in der 1 m-Durchmesser-Schicht (siehe 4.3.1), in der kleineren Anlage eine poröse Platte eingesetzt. Abb. 5.2 zeigt die Wirbelschichtanlage nach Ausführung der für die Umsatzbestimmungen benötigten Umbauten. Am zylindrischen Reaktorteil ist eine Außenisolation mit 1 m Höhe angebracht.

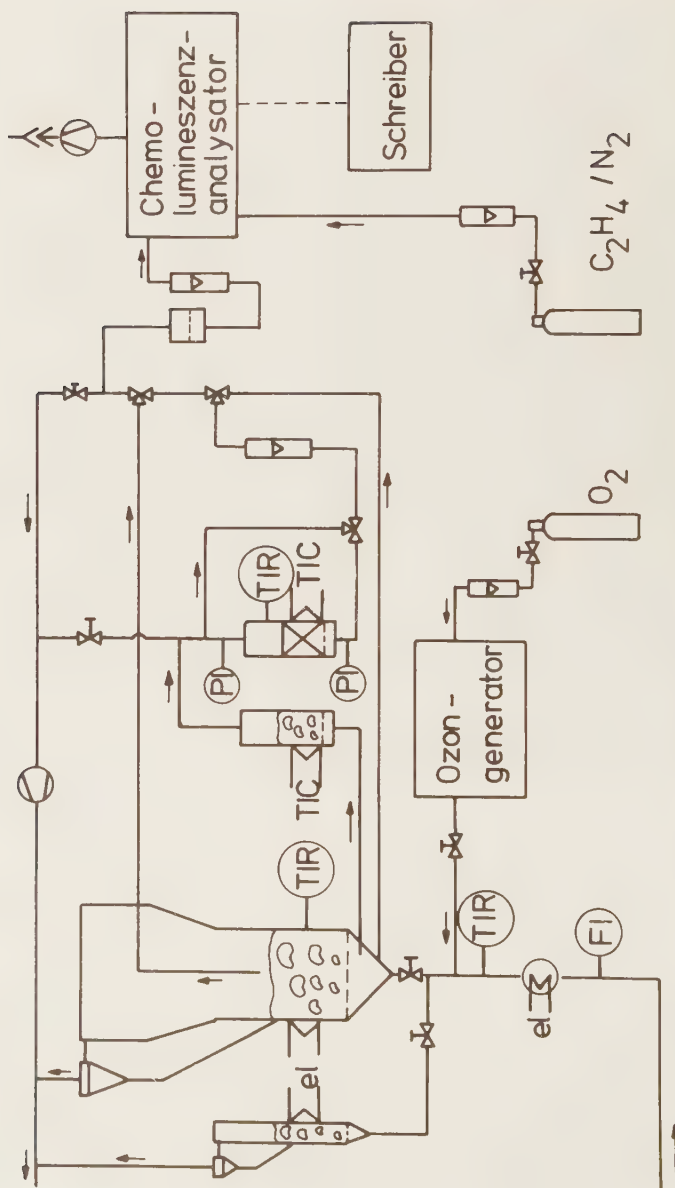


Abb. 5.1: Wirbelschichtanlage für die Durchführung von Reaktionsmessungen



Abb. 5.2:
Wirbelschichtreaktor für
die Durchführung der Ozon-
abbaureaktion

5.2.2 Festbettreaktor

Parallel zu den Umsatzbestimmungen im Wirbelschichtreaktor muß jeweils die Reaktionskinetik im Festbettreaktor bestimmt werden, um den aktuellen Aktivitätszustand des Katalysators zu erfassen. Hierfür ist ein Festbettreaktor aus Glas mit Innendurchmesser $d_t = 25$ mm, einer Höhe von 200 mm und einer Schichthöhe von etwa 60 mm mit der Wirbelschichtanlage verbunden (siehe Abb. 5.1). Das Festbett wird in einem Wasserbad thermostatiert. Eine dem Reaktor vorgeschaltete beheizte Glaskugelwirbelschicht erwärmt das Reaktionsgas. Der Gasdurchsatz wird mit einem Rotameter, Typ L 6.3, gemessen.

5.2.3 Ozonerzeugung

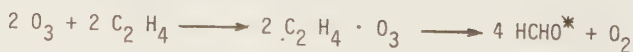
Die für die Umsatzbestimmungen benötigte Ozonmenge wird aus Flaschensauerstoff mit einem Ozongenerator (Firma Neumayer, Typ Labor 50) hergestellt. Das Gerät erzeugt nach dem Prinzip der dunklen Entladung bei einer Spannung von 15 kV und einem maximalen Sauerstoffdurchfluß von $0.85 \text{ Nm}^3/\text{h}$ eine maximale Ozonmenge von 50 g pro Stunde. Die Ozonmenge wird stufenlos über Sauerstoffdurchsatz und Betriebsspannung geregelt und unterhalb des Anströmtrichters (siehe Abb. 5.1) dem Fluidisiergas zugemischt.

5.2.4 Probenahme und Analyse

Die kontinuierliche Probenahme des Reaktionsgases in der Wirbelschicht erfolgt mit einem über Höhe und Querschnitt der Wirbelschicht verfahrbaren Geber. Dieser ist durch ein einfach auszutauschendes Filterplättchen gegen Eindringen von Staub geschützt.

Die Gasprobe kann somit kontinuierlich innerhalb der Wirbelschicht und über der Wirbelschichtoberfläche entnommen werden. Zusätzliche Probenahmestellen sind unterhalb des Gasverteilers und am Festbettreaktoreingang und Reaktorausgang angebracht. Über Teflonleitungen wird die Gasprobe von einer im Analysesystem eingebauten Pumpe abgesaugt.

Die Analyse erfolgt am "Ozone Analyzer Modell 950 A" der Firma Beckman Instruments Inc. Das Gerät arbeitet kontinuierlich und beruht auf der Chemolumineszenzanalyse. Hierbei reagiert das Ozon in der Gasprobe mit Äthylen nach folgendem Schema:



Als Reaktionsprodukte entstehen Formaldehyd und Sauerstoff. Die entstehenden Formaldehydmoleküle befinden sich in einem angeregten Zustand, der zur Aussendung eines Photons führt. Diese Lichtemission, die direkt proportional der Ozonkonzentration ist, wird mittels Photozelle gemessen, elektronisch verstärkt und am y/t-Schreiber registriert.

5.3 Versuchsdurchführung

Die Versuchsdurchführung besteht aus folgenden Teilschritten:

1. Eichung der Ozonanalyse
2. Bestimmung der Reaktionskinetik im Festbettreaktor
3. Eichung der Probenahme im Wirbelschichtreaktor
4. Bestimmung des Restanteils C/C_0 der Ozonabbaureaktion im Wirbelschichtreaktor.

5.3.1 Eichung des Ozonanalysators

Der Beckman Ozone Analyzer wird nach der Kaliumjodid-Methode durch Rücktitration mit Thiosulfatlösung geeicht [54]. Diese Methode ist für die in den hier beschriebenen Versuchen verwendeten Konzentrationen von etwa 20 ppm mit Ungenauigkeiten verbunden. Aufgrund der Linearität des Chemolumineszenzverfahrens kann jedoch, wie in Abb. 5.3 gezeigt, von Eichpunkten bei höheren Konzentrationen extrapoliert werden.

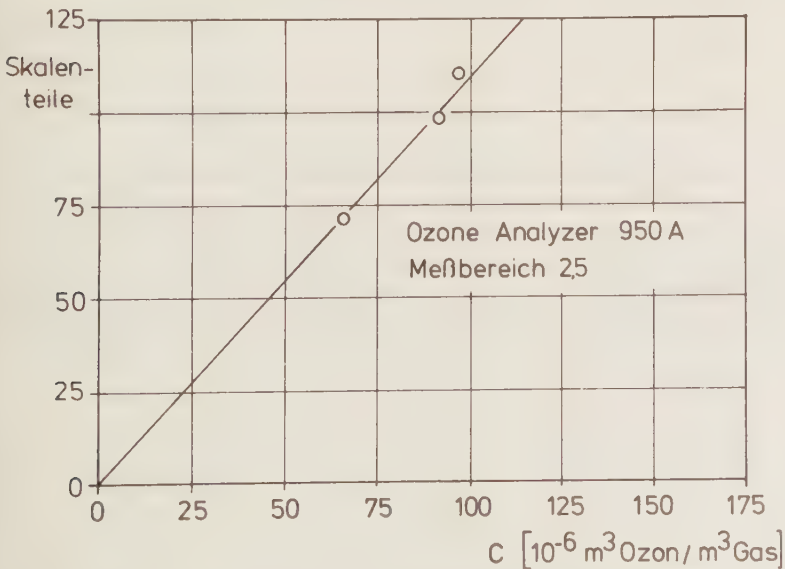


Abb. 5.3: Eichung des Ozonanalysegerätes, Geräteanzeige über Ozonkonzentration

5.3.2 Bestimmung der Reaktionskinetik im Festbettreaktor

Versuchstechnische Gründe, wie z. B. der große Gasdurchsatz, erforderten eine möglichst geringe Ozonkonzentration im Gasstrom. Die Reaktionsversuche wurden deshalb mit einer Ozonkonzentration von etwa 20 ppm am Reaktoreingang durchgeführt. Da in der Literatur keine Angaben zur Kinetik der Ozonabbaureaktion für Konzentrationen kleiner 150 ppm vorliegen [53] wird im folgenden Reaktionsordnung und Aktivierungsenergie in einem Festbettreaktor bestimmt.

5.3.2.1 Reaktionsordnung

Für eine heterogen katalytische Reaktion erster Ordnung im Festbettreaktor läßt sich mit den Annahmen von Isothermie im Reaktor, Kolbenströmung und Volumenkonstanz des Reaktionsgases sowie Vernachlässigbarkeit der Poren- und Filmdiffusion der Restanteil C/C_0 berechnen aus [43]

$$\frac{C}{C_0} = \exp \left[- \frac{k_w \cdot M}{\dot{V}} \right] \quad (5.2)$$

k_w = massebezogene Reaktionsgeschwindigkeitskonstante

M = Katalysatormasse

$\dot{V}$ = Gasvolumenstrom

(zu Poren- und Filmdiffusion siehe auch Anhang 9.7).

Durch eine Auftragung des Logarithmus des gemessenen Restanteils C/C_0 über $M/\dot{V}$ kann überprüft werden, ob die Annahme einer Reaktionsordnung von $n = 1$ für die gegebenen Versuchsbedingungen zutrifft. Für eine Reaktion erster Ordnung ergibt diese Auftragung eine Gerade durch den Ursprung.

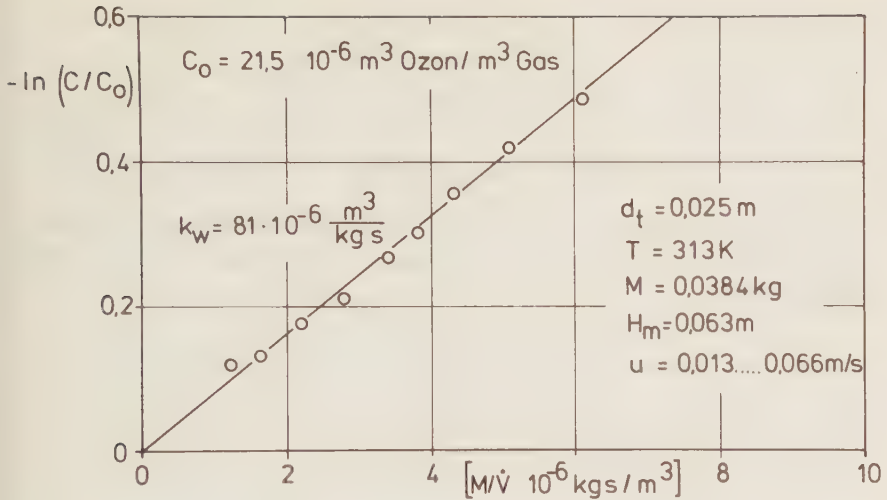


Abb. 5.4: Bestimmung von Reaktionsordnung und Reaktionsgeschwindigkeitskonstante k_W im Festbettreaktor

Wie die Auftragung der Meßergebnisse am Festbettreaktor in Abb. 5.4 zeigt (Ozonkonzentration von 21 ppm), kann für sehr geringe Ozonkonzentrationen ein Reaktionsgeschwindigkeitsansatz erster Ordnung zu Recht angenommen werden [71].

5.3.2.2 Reaktionsgeschwindigkeitskonstante

Gemäß Gl. (5.2) ergibt sich die auf die Katalysatormasse bezogene Reaktionsgeschwindigkeitskonstante k_W direkt als Steigung der Auftragung $-(\ln C/C_0)$ über $M/\dot{V}$.

Mit dem Ansatz für die Stoffänderungsgeschwindigkeit der heterogen katalytischen Reaktion erster Ordnung

$$-r_A = k_W \cdot M \cdot c \quad (5.3)$$

bei Bezug auf die Katalysatormasse und

$$-r_A = k \cdot A_t \cdot H \cdot (1 - \epsilon_b) \cdot c \quad (5.4)$$

bei Bezug auf das Volumen der Suspensionsphase des Wirbelschichtreaktors folgt die für die Berechnung des Umsatzes gemäß dem erweiterten Zweiphasenmodell benötigte auf das Suspensionsvolumen bezogene Reaktionsgeschwindigkeitskonstante

$$k = \rho_s (1 - \epsilon_{mf}) k_w \quad (5.5)$$

5.3.2.3 Aktivierungsenergie der Ozonabbaureaktion

Da der Reaktionsumsatz des Ozonabbaus sehr empfindlich auf Veränderungen der Reaktionstemperatur reagiert, benötigt man die Aktivierungsenergie der Reaktion für eine Umrechnung der Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten auf verschiedene Temperaturen. Nach dem Ansatz von Arrhenius gilt [43]:

$$k_w = k_0 e^{-\frac{E_A}{RT}} \quad (5.6)$$

mit

E_A = Aktivierungsenergie

k_0 = Präexponentieller Faktor

R = Gaskonstante

Aktivierungsenergie E_A und präexponentieller Faktor k_0 können aus der Auftragung des Logarithmus der Geschwindigkeitskonstante über dem Kehrwert der absoluten Temperatur bestimmt werden.

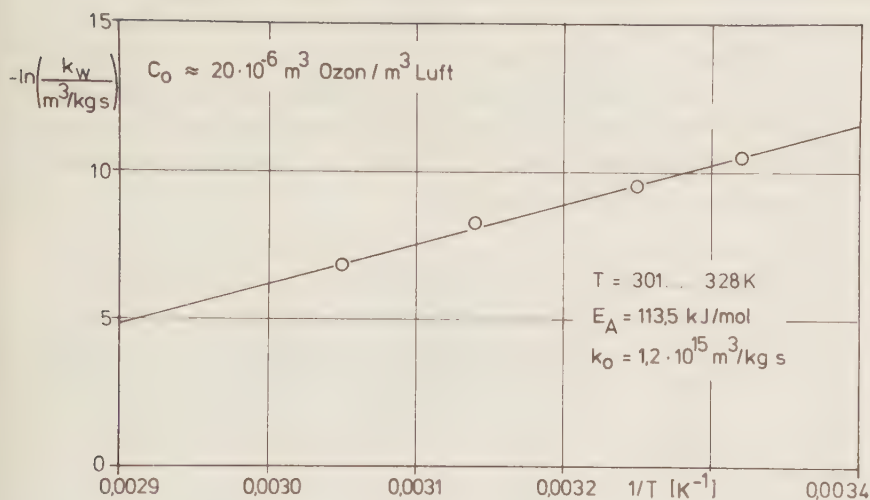


Abb. 5.5: Bestimmen von Aktivierungsenergie und präexponentiellem Faktor der Ozonabbaureaktion

Die Auftragung der im Festbettreaktor durch Variation der Reaktionstemperatur gewonnenen Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten k_w über dem Kehrwert der absoluten Reaktionstemperatur (Abb. 5.5) ergibt eine Aktivierungsenergie der Ozonabbaureaktion von $E_A = 113,5 \text{ kJ/mol}$ ($27,1 \text{ kcal/mol}$), und stimmt damit mit dem von v. Swaaij [32] für ähnliche Versuchsbedingungen gefundenen Wert von $E_A = 27 \text{ kcal/mol}$ überein.

5.3.2.4 Desaktivierung des Katalysators

Der Katalysator für den Wirbelschichtreaktor wird durch Imprägnieren des Sandes mit Eisenoxid gewonnen. Wie eigene Abriebsversuche in Laborwirbelschichten zeigen, wird ein großer Teil des Eisenoxids bereits in den ersten Betriebsstunden wieder abgerieben und aus der Wirbelschicht ausgetragen[70]. Es ist deshalb für die erste Zeit bei Umsatzversuchen im Wirbelschichtreaktor mit einer starken Desaktivierung des Katalysators zu rechnen. (Nähere Angaben über Katalysatorherstellung und Abriebsverhalten des Katalysators sind in Anhang 9.8 zu finden).

Für jeden Versuch zur Umsatzbestimmung im Wirbelschichtreaktor wird aus der Wirbelschicht eine repräsentative Katalysatorprobe für den Festbettreaktor entnommen. In Abb. 5.6 ist die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante über der Betriebsdauer der Wirbelschicht aufgetragen. Der starke Desaktivierungseffekt in den ersten Betriebsstunden bedingt, daß die in diesem Zeitbereich nach Einfüllen einer neuen Katalysatorcharge durchgeführten Umsatzbestimmungen verworfen werden müssen.

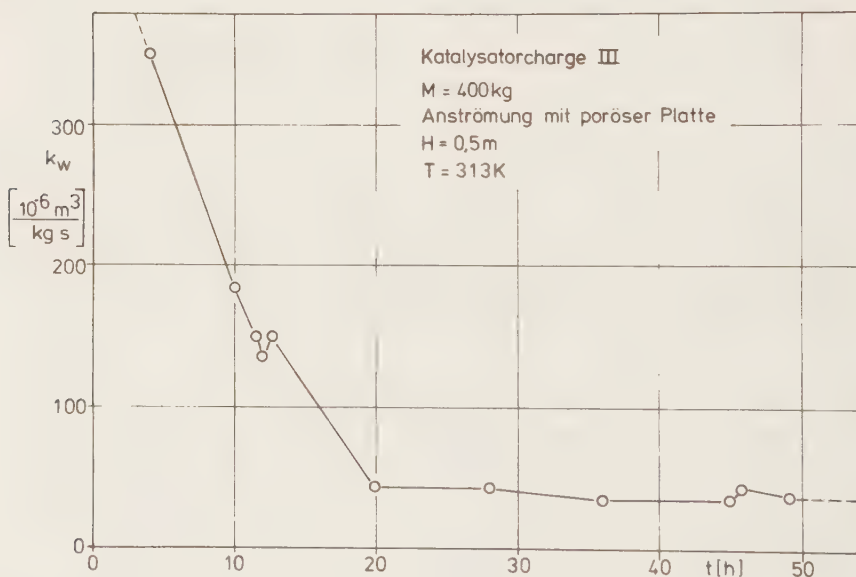


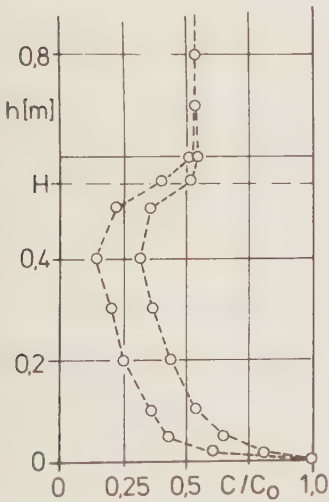
Abb. 5.6: Katalysatoraktivität als Funktion der Standzeit

5.3.3 Eichung des Probenahmesystems

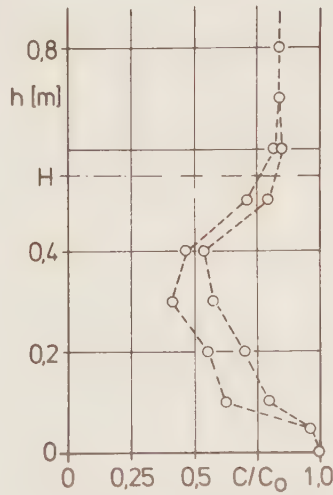
Für die Bestimmung des Umsatzes der Ozonabbaureaktion im Wirbelschichtreaktor werden die Reaktanden-Konzentrationen am Reaktoreingang und Reaktorende benötigt. Die Probenahme für die Eingangskonzentration wird dicht unterhalb des Anströmbodens vorgenommen. Bei der Probenahme am Reaktorende muß einerseits darauf geachtet werden, daß der Umsatz im Free-board nicht das Meßergebnis verfälscht, andererseits darf die Probenahme keinesfalls in der Wirbelschicht liegen. Diese Forderung ergibt sich aus

der Hydrodynamik der Wirbelschicht, da eine kontinuierliche Probenahme innerhalb der Wirbelschicht nicht berücksichtigt, daß zwar fast der gesamte Gasdurchsatz in der Blasenphase transportiert wird, diese aber nur zu einem Zehntel der gesamten Meßdauer von der Probenahme erfaßt wird. Im folgenden wird beschrieben, wie eine Probenahmestelle, die die oben genannten Forderungen erfüllt, für den Wirbelschichtreaktor angegeben werden kann:

1. Wird die Probenahmesonde z. B. in der Wirbelschichtachse vom Boden der Wirbelschicht über die Höhe verfahren, so ergibt sich ein typisches in Abb. 5.7 für Anströmung mit poröser Platte und Lochboden bei einer Gasgeschwindigkeit von $u = 0.15 \text{ m/s}$ aufgetragenes Konzentrationsprofil in der Wirbelschicht. Die beiden Linien kennzeichnen dabei die Schwankungsbreite der lokalen Ozonkonzentration.



Anströmung mit poröser Platte
 $u = 0.15 \text{ m/s}$



Anströmung mit Lochboden
 $u = 0.15 \text{ m/s}$

Abb. 5.7: Bestimmung der Ozonkonzentration in der Wirbelschicht als Funktion der Höhe über dem Boden

Bei der kontinuierlichen Probenahme in der Wirbelschicht täuscht die zeitliche Überbetonung der Suspensionsphase einen stärkeren Ozonabbau vor, als dann am Reaktorende, wie auf Abb. 5.7 deutlich zu erkennen ist, tatsächlich erreicht wird. Offensichtlich kann bei dem gewählten Versuchsbeispiel mit etwa 0.55 m Schichthöhe erst in einer Höhe von 0.7 m über dem Anströmboden die Ozonkonzentration im Reaktionsgas bestimmt werden, ohne daß die Probenahmesonde zeitweise in die Schicht eintaucht, und damit die Ergebnisse verfälscht.

2. Die nächste zu untersuchende Frage ist, ob in der aus dem vorhergehenden Versuch bestimmten Probenahmehöhe die Reaktanden-Konzentration über dem Wirbelschichtquerschnitt gleichmäßig ist. In Abb. 5.8 ist das beim radialen Verfahren der Sonde erhaltene Konzentrationsprofil aufgetragen, wobei die Versuchseinstellung derjenigen aus Abb. 5.7 mit Anströmung durch poröse Platte entspricht. Der Geber befand sich in einer Höhe von 0.70 m über dem Boden.

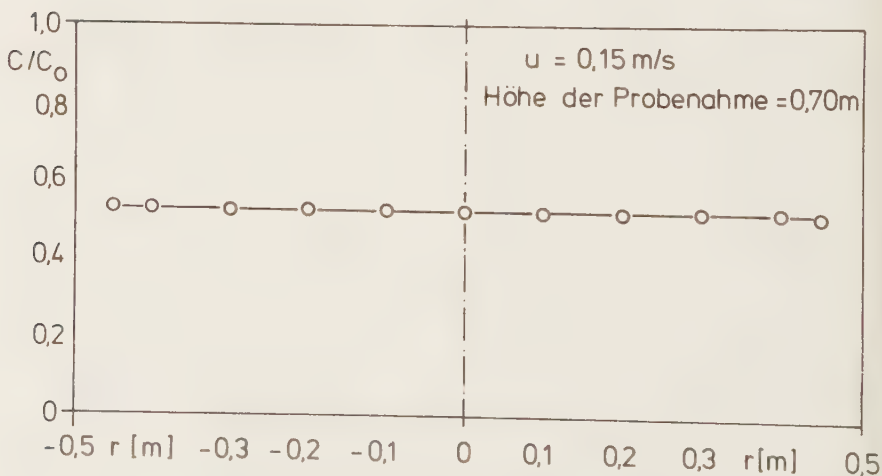


Abb. 5.8: Ozonkonzentration über der Wirbelschichtoberfläche als Funktion der radialen Position der Probenahme

Wie Abb. 5.8 zeigt, ist es aufgrund der vollständigen radialen Vermischung des Gases über der Wirbelschichtoberfläche möglich, die Konzentration am Reaktorende einzig durch eine lokale Probenahme in geringer Höhe über der Wirbelschicht zu bestimmen. Hierdurch kann der Einfluß einer Reaktion im Freiraum auf das Ergebnis der Umsatzbestimmungen ausgeschlossen werden.

5.3.4 Umsatzbestimmung im Wirbelschichtreaktor

An den Wirbelschichtreaktoren mit 0.20 m und 1.0 m Durchmesser wurden jeweils bei einer Schütthöhe von etwa 0.5 m Umsatzbestimmungen mit Hilfe der Ozonabbaureaktion durchgeführt, gemäß dem im vorhergehenden Abschnitt beschriebenen Vorgehen für die Probenahme in der Wirbelschicht. Bei Verwendung unterschiedlicher Gasverteiler wurde dabei die Anströmgeschwindigkeit zwischen 0.06 m/s und 0.25 m/s variiert. Durch die parallele Bestimmung der Reaktionskinetik im Festbettreaktor kann jeweils der experimentell am Wirbelschichtreaktor bestimmte Restanteil der Ozonabbaureaktion C/C_0 mit dem nach Gl. (5.1) berechneten Reaktionsumsatz verglichen werden. Ausschließlich durch Variation der Reaktionstemperatur wurde die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante k zwischen $k = 0.02 \text{ s}^{-1}$ und 1.7 s^{-1} verändert. Die Variationsbreite von k entspricht einem Bereich der Ha-Zahlen von $Ha = 0.07$ bis 2.0 .

5.4 Ergebnis der Reaktionsversuche in der Wirbelschicht

Der Schwerpunkt der Reaktionsversuche lag in dieser Arbeit beim Vergleich der für verschiedene Anströmböden erhaltenen Reaktionsergebnisse mit der theoretisch - aus Strömungsmechanik, Stoffaustausch und Reaktionskinetik - berechneten Umsatzwerten. Darüber hinaus wurde der Scale-Up-Einfluß in Wirbelschichten mit unterschiedlichen Reaktordurchmessern für das vorliegende Reaktionssystem untersucht.

5.4.1 Einfluß von Reaktionsgeschwindigkeit und Gasgeschwindigkeit

In Abb. 5.9 ist der experimentell bestimmte Restanteil der Ozonabbaureaktion als Funktion der Reaktionsgeschwindigkeitskonstante aufgetragen. Die Gasgeschwindigkeit wurde zwischen $u = 0.1$ und 0.25 m/s variiert. Die Anströmung erfolgte mittels poröser Platte.

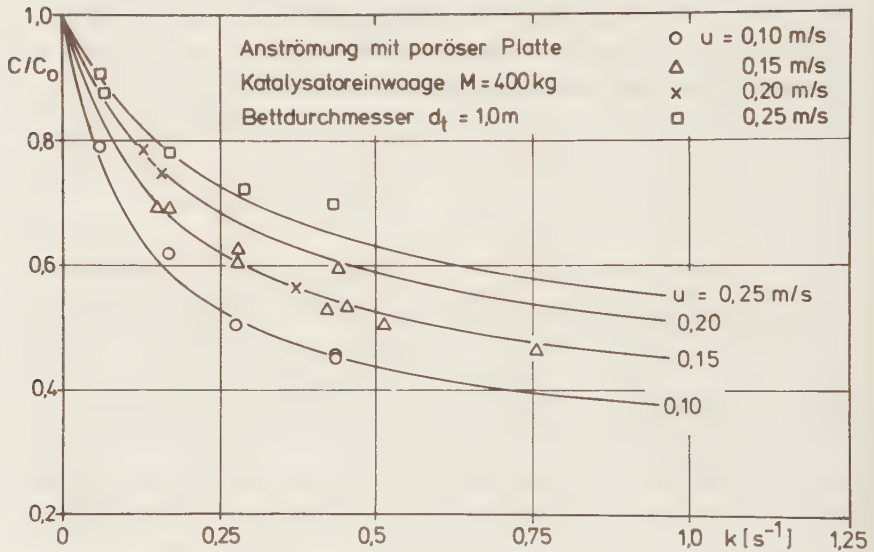


Abb. 5.9: Restanteil der Ozonabbaureaktion als Funktion von Reaktionsgeschwindigkeitskonstante k und Gasgeschwindigkeit u

Wie Abb. 5.9 zeigt, nimmt mit zunehmender Geschwindigkeit der Umsetzung der Restanteil der Ozonabbaureaktion ab, während mit zunehmender Gasgeschwindigkeit, d.h. verringerter Gasverweilzeit in der Schicht, weniger umgesetzt wird. Der Vergleich mit den theoretisch gemäß Gl. 5.1 berechneten Kurven zeigt, daß das Wirbelschichtmodell durch die Reaktionsergebnisse bestätigt wird, ohne daß Anpassungsparameter erforderlich sind [72].

5.4.2 Einfluß des Reaktordurchmessers

Der Scale-Up-Einfluß wird im erweiterten Zweiphasenmodell von Werther (Kap. 2.3) durch eine empirische Korrelation beschrieben, die die unterschiedlich großen Blasaufstiegsgeschwindigkeiten in Wirbelschichten unterschiedlicher Durchmesser berücksichtigt. Die Gültigkeit dieser Scale-Up-Funktionen zeigt sich in Abb. 5.10 beim Vergleich des vorausberechneten Verlaufs mit den gemessenen Werten. Der Restanteil C/C_0 ist über der Reaktionsgeschwindigkeitskonstante für die Wirbelschichtreaktoren mit 0.2 m und 1 m Durchmesser aufgetragen. Die Anströmung erfolgte mittels poröser Platte [74].

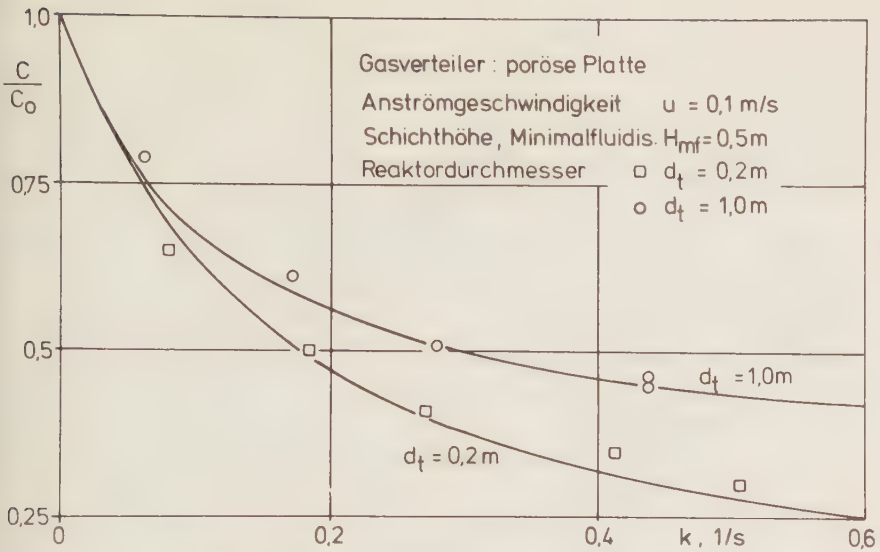


Abb. 5.10: Restanteil der Ozonabbaureaktion als Funktion des Reaktordurchmessers d_t

5.4.3 Einfluß der Gasverteilerkonstruktion

Die Abbn. 5.11 und 5.12 veranschaulichen den Einfluß der Verteilerkonstruktion auf den Reaktionsumsatz. Verglichen werden poröse Platte und Lochboden für die Gasgeschwindigkeiten $u = 0,15 \text{ m/s}$ und $u = 0,25 \text{ m/s}$. Aufgetragen ist der Restanteil des Ozons über der Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten.

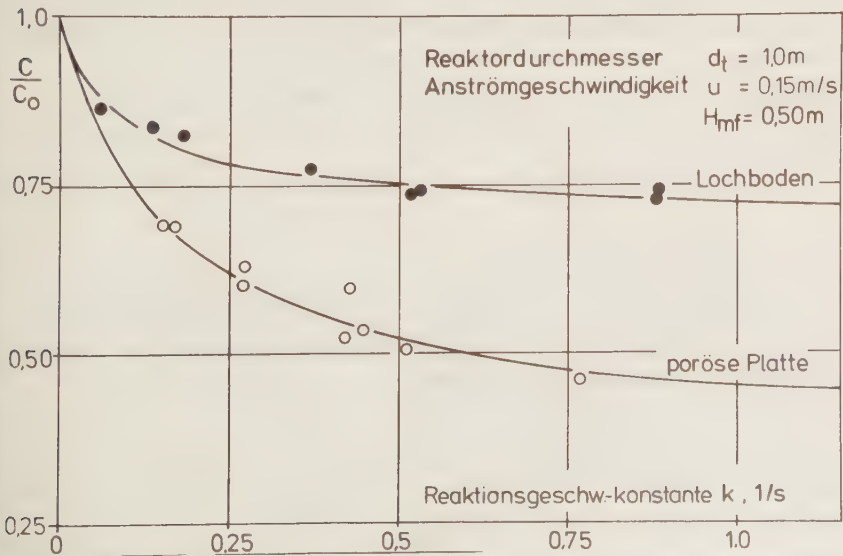


Abb. 5.11: Restanteil der Ozonabbaureaktion als Funktion des Gasverteilers für $u = 0,15 \text{ m/s}$

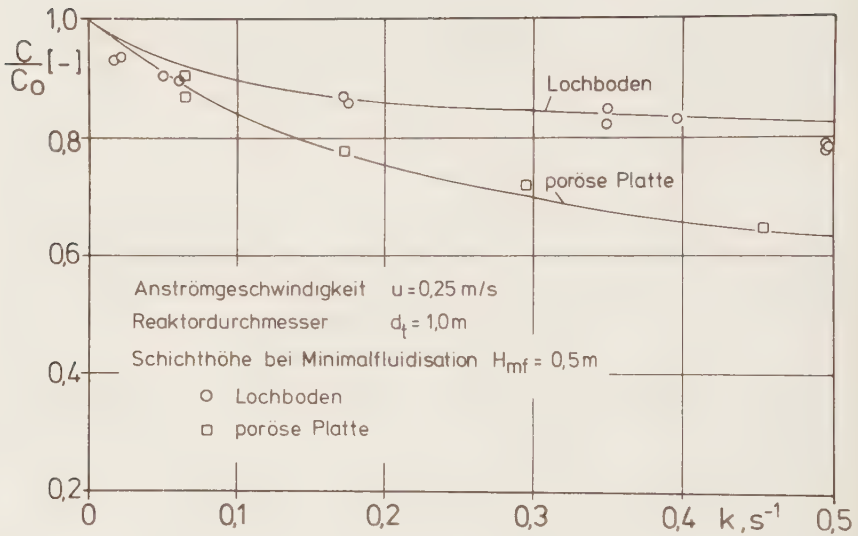


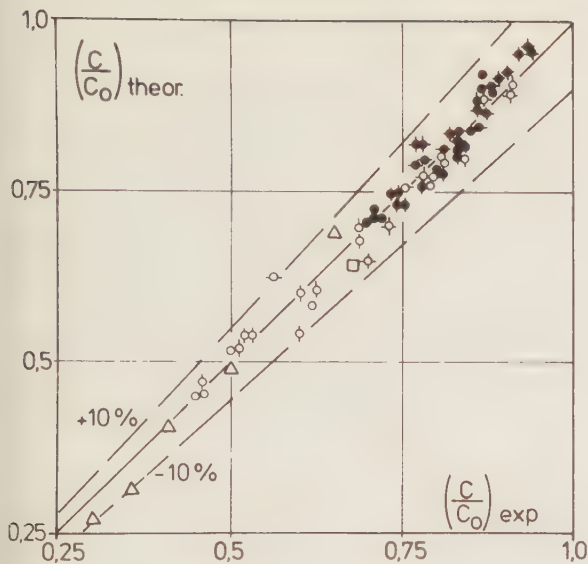
Abb. 5.12: Restanteil der Ozonabbaureaktion als Funktion des Gasverteilers für $u = 0.25 \text{ m/s}$

Der Einfluß der Verteilerkonstruktion ist deutlich zu erkennen:

Die im Fall der porösen Platte erheblich größere Stoffaustauschfläche liefert eine wesentliche Vergrößerung des Ozonumsatzes bzw. -verringern des Restanteils. Wie der Vergleich der Versuchsergebnisse mit den theoretisch berechneten Kurven zeigt, ist das in dieser Arbeit entwickelte Modell in der Lage, den Einfluß der Gasverteilerkonstruktion eindeutig zu beschreiben.

5.4.4 Zusammenstellung der Ergebnisse

Eine Zusammenfassung aller in dieser Arbeit durchgeführten Reaktionsversuche ist in Abb. 5.13 in einem Vergleich der gemessenen mit den vorausgerechneten Restanteilen C/C_0 gegeben.



$d_t = 0,2 \text{ m}$
poröse Platte
 $\Delta u = 0,10 \text{ m/s}$

$d_t = 1,0 \text{ m}$

$u [\text{m/s}]$	poröse Platte	Lochboden
0,06	□	•
0,10	○	•
0,15	◇	◆
0,20	◊	◆
0,25	◇	◆

Abb. 5.13: Vergleich der berechneten mit den gemessenen Werten C/C_0 für alle Reaktionsversuche

Die insgesamt 65 Messungen überdecken einen Bereich der Gasgeschwindigkeiten von 0.06 bis 0.25 m/s in Wirbelschichten von 0.2 und 1 m Durchmesser mit poröser Platte und Lochboden als Gasverteiler. Die Abweichung des vorausberechneten Restanteils beträgt in keinem Fall mehr als 10 % des gemessenen Wertes.

6. Zusammenfassung

Es wird in dieser Arbeit ein Modell der mathematischen Beschreibung des Gasverteilereinflusses auf Wirbelschichtreaktoren vorgestellt. In Weiterentwicklung des Zweiphasenmodells nach Werther wird hierbei der Einfluß der Gasverteilerkonstruktion auf das Stoffaustausch- und Reaktionsverhalten der Wirbelschicht einzig über den Einfluß des Anströmbodens auf die spezifische Stoffaustauschfläche berücksichtigt. Durch voneinander unabhängige Untersuchungsmethoden - Verweilzeitverteilungsmessungen und Durchführung einer Modellreaktion - wird dieses Modell, das die Annahme eines gleichen Stoffaustauschkoeffizienten für Strahl- und Blasenzone der Wirbelschicht beinhaltet, voll bestätigt.

7. Verzeichnis der Formelzeichen

a	auf Wirbelschichtvolumen bezogene Stoffaustauschfläche, spezifische Austauschfläche	m^{-1}
a_b	spezifische Austauschfläche der Blasenphase	m^{-1}
a_j	spezifische Austauschfläche der Bodenzone	m^{-1}
A	Stoffaustauschfläche	m^2
A_t	Reaktorquerschnittsfläche	m^2
c_b	molare Konzentration der betrachteten Komponente in der feststofffreien Phase	mol/m^3
c_d	molare Konzentration in der Suspensionsphase	mol/m^3
C	Volumenkonzentration der betrachteten Komponente im Gasstrom am Reaktorausgang	-
C_o	Volumenkonzentration im Gasstrom am Reaktoreingang	-
C_b	Volumenkonzentration in Blase, Blasenphase, feststofffreier Phase	-
C_c	Volumenkonzentration in der cloud	-
C_d	Volumenkonzentration in der Suspensionsphase	-
C_{dk}	Volumenkonzentration im Suspensionsphasenkern	-
$\bar{C}_b$	mit Impulsfunktion normierte Tracerkonzentration der feststofffreien Phase	-
$\bar{C}_d$	mit Impulsfunktion normierte Tracerkonzentration der Suspensionsphase	-
$\bar{C}$	mittlere Reaktandenkonzentration im strömenden Medium des Festbetts	-
$\bar{C}_s$	mittlere Reaktandenkonzentration an der Katalysator- kornoberfläche	-

d_b	Blasendurchmesser, Durchmesser der volumengleichen Kugel	m
d_o	Durchmesser der Gaseintrittsbohrung des Gasverteilers	m
d_t	Reaktordurchmesser	m
d_p	Partikeldurchmesser	μm
$\bar{d}_p$	mittlerer Partikeldurchmesser, Sauterdurchmesser	μm
D	molekularer Diffusionskoeffizient	m^2/s
D_e	effektiver Diffusionskoeffizient in der Suspension	m^2/s
$D_{e,s}$	effektiver Diffusionskoeffizient im Katalysator-korn	m^2/s
D_{ax}	Koeffizient der axialen Dispersion der Suspensions-phase	m^2/s
E_A	Aktivierungsenergie	kJ/mol
f	flächenbezogene Blasenfrequenz	$1/\text{m}^2\text{s}$
F	Funktion des Höheneinflusses bei Berechnung der spezifischen Austauschfläche nach Werther	-
g	Erdbeschleunigung	m/s^2
h	Höhe über dem Anströmboden	m
H	Höhe der expandierten Wirbelschicht	m
H_m	Festbetthöhe	m
H_{mf}	Höhe bei Minimalfluidisation	m
h_o	Starthöhe des Blasenwachstums bei technischen Gasverteilern	m
h'	Äquivalenthöhe der Blasenwachstumskorrelation von Werther	m
h^*	Höhe, von der an Blasenwachstumsbeschränkung auftritt	m
Ha	Hattazahl	-

J_0	Besselfunktion erster Art nullter Ordnung	-
J	Funktion des Höheneinflusses bei Berechnung des Blasengasholdup von Werther	-
k	auf Suspensionsphasenvolumen bezogene Reaktionsgeschwindigkeitskonstante	1/s
k_r	auf Katalysatorvolumen bezogene Reaktionsgeschwindigkeitskonstante	1/s
k_w	auf Katalysatormasse bezogene Reaktionsgeschwindigkeitskonstante	$\text{m}^3/\text{kg s}$
k_0	präexponentieller Faktor der Arrheniusgleichung	$\text{m}^3/\text{kg s}$
k_b	auf Blasenoberfläche bezogener Stoffübergangskoeffizient Blase/Suspension	m/s
k_j	auf Strahloberfläche bezogener Stoffübergangskoeffizient Strahl/Suspension	m/s
k_{bc}	auf Blasenvolumen bezogener Stoffaustauschkoeffizient Blase/cloud	1/s
k_{cd}	auf Blasenvolumen bezogener Stoffaustauschkoeffizient cloud/Suspension	1/s
K_f	Reaktionskennzahl für die Berechnung des Umsatzes nach Kunii und Levenspiel	-
l	Mantellänge der Bodenstrahlen	m
L	horizontale Eindringtiefe der Bodenstrahlen	m
M	Katalysatormasse	kg
M_0	nulltes, erstes und zweites Moment der Verweilzeitverteilungskurve	-
M_1		s
M_2		s^2

n	Reaktionsordnung	-
n_0	Anzahl der Gaseintrittsbohrungen des Anströmbodens	-
n_b	Anzahl Blasen im Bilanzelement	-
n_k	Anzahl Kapillaren des Probenahmesystems	-
n_i	Stoffmenge der Komponente i	mol
N	Anzahl ideal vermischter Rührkessel einer Rührkesselkaskade	-
N_α	Anzahl Stoffaustauscheinheiten	-
N_r	Anzahl Reaktionseinheiten	-
N_E	Anzahl Dispersionseinheiten	-
N_k	Anzahl Stoffaustauscheinheiten in Modell von Behie und Bergougrou	-
O_v	auf Festbettvolumen bezogene Katalysatoroberfläche	1/m
p	Variable der Laplace Transformation	-
$\Delta p_{\bar{u}}$	an der Kapillarspitze gegenüber Atmosphärendruck herrschender Überdruck	mm WS
Δp	Druckverlust von Anströmboden und Wirbelschicht	mm WS
p_v	im Vakuumsystem herrschender Druck	mbar
P, Q_1, Q_2, Q_3	Rechenkonstanten	-
q	Rechenkonstante	-
r_A	Stoffänderungsgeschwindigkeit der Ozonabbaureaktion	mol/s
r_{eff}	effektive, auf das Festbettvolumen bezogene Reaktionsgeschwindigkeit	1/s

R	universelle Gaskonstante ($R = 8314.3 \text{ J/kmol K}$)	J/kmol K
R_k	Radius des Bodenstrahlkegels	m
Re^*	modifizierte Reynoldszahl	-
s	Integrationsvariable der Besselfunktion	-
S_b	Blasenoberfläche	m^2
S_j	Strahloberfläche	m^2
Sc	Schmidtzahl	-
T	absolute Temperatur	K
t_n	Teilung des Gasverteilers	mm
t	Zeit	s
t_p	Zeitabstand zwischen Impulsaufgabe und Signalpeak	s
$\bar{t}$	mittlere Verweilzeit	s
$\bar{t}_0$	mittlere Verweilzeit, Reaktoreingang	s
$\bar{t}_1$	mittlere Verweilzeit, Reaktorende	s
$\bar{t}_s$	mittlere Systemverweilzeit, Kapillarspitze/Analysator	s
u	auf Wirbelschichtquerschnittsfläche bezogener Gasdurchsatz, Leerrohrgeschwindigkeit	m/s
u_{mf}	Leerrohrgeschwindigkeit bei Minimalfluidisation	m/s
u_0	Gasgeschwindigkeit in den Gaseintrittsbohrungen des Anströmbodens	m/s
V	Reaktorvolumen	m^3
V_j	Volumen des Bodenstrahls	m^3
V_b	Summe aller Blasenvolumina	m^3

$\dot{V}$	Gasdurchsatz durch die Wirbelschicht	m^3/s
$\dot{V}_0$	Gasdurchsatz durch Gaseintrittsbohrung	m^3/s
$\dot{V}_b$	flächenbezogener Blasengasstrom	m/s
v_b	Blasensteiggeschwindigkeit nach Davidson und Harrison	m/s
$\bar{v}_b$	mittlere Blasensteiggeschwindigkeit nach Werther	m/s
x_0	Höhe über der Bohrung, von der aus Stoffaustausch zwischen Strahl und Suspension angenommen wird	m
$x_1,$ x_2, x_3	Rechenkonstanten	-
X	Umsatzgrad	-
y	Querkoordinate positiv von Blasenoberfläche in Suspensionsphase hinein gerechnet	m

α	flächenbezogener Stoffaustauschkoeffizient zwischen feststofffreier Phase und Suspensionsphase	m/s
α'	auf Wirbelschichtvolumen bezogener Stoffaustausch- koeffizient zwischen Blasen- und Suspensionsphase	1/s
β	$= \frac{u_{mf}}{u - u_{mf}}$	
γ_b	Feststoffvolumen in der Blase bezogen auf Blasenvolumen	-
γ_c	Feststoffvolumen in der cloud bezogen auf Blasenvolumen	-
γ_d	Feststoffvolumen in der Suspension bezogen auf Blasen- volumen	-
δ	Filmdicke	m
$\delta(t)$	Impulsfunktion	-
ϵ	Lückengrad der Wirbelschicht	-
ϵ_b	Volumenanteil des Blasengases der Wirbelschicht	-
$\epsilon_b(h)$	lokaler mittlerer Blasengasvolumenanteil	-
ϵ_{bj}	Volumenanteil des Gases der feststofffreien Phase am Wirbelschichtvolumen	-
ϵ_j	Volumenanteil des Gases in Bodenstrahlen am Wirbelschichtvolumen	-
ϵ_m	Lückengrad des Festbetts	-
ϵ_{mf}	Lückengrad bei Minimalfluidisation	-
ϵ_p	Partikelporosität (innere Porosität)	-
ζ	dimensionslose Höhe	-
η	Wirkungsgrad	-
θ	halber Öffnungswinkel des Bodenstrahls	grad
θ	mit Verweilzeit der Wirbelschicht normierte Zeit	-
κ	Auswertekonstante in Gl. (2.18)	-
ν	kinematische Viskosität	m ² /s
ξ	Blasenformfaktor	-

ρ_f	Fluiddichte	kg/m^3
ρ_s	Feststoffdichte	kg/m^3
σ^2	mit Verweilzeit normierte Varianz	-
$\sigma_{t_0}^2$	Varianz des Signals am Reaktoreingang	s^2
$\sigma_{t_1}^2$	Varianz des Signals am Reaktorausgang	s^2
$\sigma_{t_s}^2$	Varianz des Signals der Systemverweilzeit	s^2
τ	Gasverweilzeit in der Wirbelschicht	s
τ_F	Labyrinthfaktor	-
τ_m	Gasverweilzeit im Festbett	s
$f(d_t)$	Funktion des Reaktordurchmessers	-
Φ	Verhältnis von Film- zu Suspensionsvolumen	-
Φ_g	Weisz-Modul	-
ψ	Blasengasstromanteil	-
ω	freies Flächenverhältnis, Anteil der Bohrungsflächen am Wirbelschichtquerschnitt	-

8. Literatur

- [1] Schügerl, K.: Chem. Ztg. 96 (1972) 5, S. 265
- [2] Holcomb, W.F.: Combustion 48 (1977) 10, S. 31
- [3] Simon, E.J.: Pharm. Ind. 38 (1976) 11a, S. 1081
- [4] Geldart, D.: Chemistry and Industry (1967) 2, S. 1474
- [5] Werther, J.: Chem.-Ing.-Technik 49 (1977) 10, S. 777
- [6] Werther, J.; Hegner, B.: Chem.-Ing.-Technik 52 (1980) 2, S. 106
- [7] Werther, J.: Int. J. Multiphase Flow 3 (1977), S. 367
- [8] Behie, L.A.; Bergougnou, M.A.; Baker, S.G.J. in: Fluidization Technology Bd. 1 (Hrsg. D.L. Keairns) Verlag Hemisphere Publ. Corp., Washington 1976
- [9] Behie, L.A.; Kehoe, P.: AIChE J. 19 (1973) 5, S. 1070
- [10] Panthel, G.; Hofmann, H.: Chem.-Ing.-Technik 48 (1976) 3, S. 231
- [11] Werther, J.: German Chem. Eng. 1 (1978), S. 166
- [12] Grace, J.R.: AIChE Symp. Ser. 67 (1971) 116, S. 159
- [13] Rowe, P.N.: Proc. 5th Europ. Symp. Reaction Engng. Amsterdam 1972, A 9-1
- [14] Horio, M.; Wen, C.Y.: AIChE Symp. Ser. 73 (1977) 161, S. 9
- [15] van Swaaij, W.P.M.: ACS Symp. Ser. 72 (1978), S. 193
- [16] Chiba, T.: Chem. Eng. Sci. 25 (1970), S. 1375
- [17] Murray, J.D.: Journ. Fluid. Mech. 22 (1965), S. 57
- [18] Davidson, J.F.; Harrison, D.: Fluidized Particles, Cambridge, University Press, 1963
- [19] Kunii, D.; Levenspiel, O.: Fluidization Engineering, John Wiley & Sons, New York, 1969
- [20] Toei, R.: AIChE Symp. Ser. 69 (1973) 128, S. 18
- [21] Harrison, D.; Davidson, J.F.: Fluidization, Academic Press, New York-London, 1972

- [22] Kunii, D.;
Levenspiel, O.: J & EC Fundamentals 7 (1968) 3, S. 446
- [23] Voice, E.W.: J. Iron and Steel Inst. 163 (1949), S. 312
- [24] Voice, E.W.: J. Iron and Steel Inst. 166 (1950), S. 315
- [25] Askins, J.W.;
Hinds, G.P.;
Kunreuther, P.: Chem. Eng. Progr. 47 (1951) 8, S. 401
- [26] Gilliland, E.R.;
Mason, E.A.;
Oliver, R.C.: Ind. and Engng. Chemistry 44 (1952) 1,
S. 218
- [27] Gilliland, E.R.;
Mason, E.A.: Ind. and Engng. Chemistry 45 (1953) 6,
S. 1177
- [28] Danckwerts, P.V.;
Jenkins, J.W.;
Place, G.: Chem. Eng. Sci. 3 (1954), S. 26
- [29] May, W.G.: Chem. Eng. Progr. 55 (1959) 12, S. 49
- [30] May, W.G.: Dechema-Monographie Nr. 471, Bd. 32, S. 261
Verlag Chemie, Weinheim 1959
- [31] van Deemter, J.J.: Chem. Eng. Sci. 13 (1961), S. 143
- [32] van Swaaij, W.P.M.;
Zuiderweg, F.J.: Proc. 5th Europ. Symp. Reaction Engng.,
Amsterdam 1972, S. B 9 - 25
- [33] de Vries, R.J.;
van Swaaij, W.P.M.;
Mantovani, S.;
Heijkoop, A.: Proc. 5th Europ. Symp. Reaction Engng.
Amsterdam 1972, S. B 9 - 59
- [34] de Groot, J.H.: Proc. Symp. Fluidization, Eindhoven 1967,
S. 348
- [35] Schilling, H.D.: Chem.-Ing.-Technik 51 (1979) 3, S. 184
- [36] Werther, J.;
Holighaus, R.: Chem.-Ing.-Technik 50 (1978) 9, S. 662
- [37] Chiba, T.;
Kobayashi, H.: Int. Symp. Fluidization, Toulouse, 1973
- [38] Cooke, M.J.;
Harris, W.;
Highley, J.;
Williams, D.F.: Tripartite Chem. Eng. Conf. Montreal 1968
- [39] Hovmand, S.;
Freedman, W.;
Davidson, J.F.: Trans. Instn. Chem. Engrs. 49 (1971),
S. 149

- [40] Basov, V.A.; Intern. Chem. Engng. 9 (1969), S. 263
Markhevka, V.I.;
Melik-Akhnazarov, T.Kh.;
Orochko, D.J.:
- [41] Merry, J.M.D.: AIChE J. 21 (1975) 3, S. 507
- [42] Merry, J.M.D.: Trans. Instn. Chem. Engrs. 49 (1971), S. 189
- [43] Levenspiel, O.: Chemical Reaction Engineering
John Wiley & Sons, New York-London, 1962
- [44] Anzelius, A.: ZAMM 6 (1926), 4, S. 291
- [45] v.d. Laan, E.T.: Chem. Eng. Sci. 7 (1958), S. 187
- [46] Goedecke, R.; Powd. Techn. 21 (1978), S. 227
Schügerl, K.;
Todt, J.:
- [47] Bohle, W.; Fluidization, Cambridge, University Press, 1978
van Swaaij, W.P.M.:
- [48] Chavarie, C.; Proc. 5th Europ. Symp. on Chem. Reaction Engng.
Grace, J.R.: Amsterdam 1972, S. B 9 - 37
- [49] Orcutt, J.C.; Chem. Eng. Progr. Symp. Ser. 38 (1962) 1, S. 58
Davidson, J.F.;
Pigford, R.L.:
- [50] Colin, P.; AIChE J. 22 (1976) 1, S. 38
Fryer, C.;
Potter, O.E.:
- [51] Frye, C.G.; AIChE J. 4 (1958) 4, S. 403
Lake, W.C.;
Eckstrom, H.C.:
- [52] Calderbank, P.H.; Proc. Int. Symp. Fluidization, Eindhoven 1967,
Toor, F.D.; S. 652
Lancaster, F.H.:
- [53] Calderbank, P.H.; Chem. Eng. Sci. 31 (1976), S. 1216
Lewis, J.M.O.:
- [54] Jander, G.; Maßanalyse, Verlag Walter de Gruyter & Co,
Jahr, K.F.; Berlin 1969
Knoll, H.:
- [55] Emig, G.; Chem.-Ing.-Technik 47 (1975) 15, S. 637
Hofmann, H.:
- [56] Brauer, H.: Stoffaustausch einschließlich chemischer Reaktionen
Verlag Sauerländer, Aarau und Frankfurt, 1971
- [57] Emig, G.; Chem.-Ing.-Technik 47 (1975) 21, S. 889
Hofmann, H.:

- [58] Weisz, P.P.; Prater, C.D.: Advances in Catalysis 6 (1954), S. 143
- [59] Werther, J.: Chem.-Ing.-Technik 50 (1978) 11, S. 850
- [60] Avedesian, M.M.; Davidson, J.F.: Trans. Inst. Chem. Eng. 51 (1973), S. 121
- [61] Piccinini, N.; Grace, J.R.; Mathur, K.B.: Chem. Eng. Sci. 34 (1979), S. 1257
- [62] Danckwerts, P.V.: Chem. Eng. Sci. 2 (1953), S. 1
- [63] Pupp, W.: Vakuumtechnik, Thiemig Taschenbücher Bd. 43, Verlag Karl Thiemig, München 1971
- [64] Bronstein, J.N.; Semendjajew, K.A.: Taschenbuch der Mathematik Verlag Harri Deutsch, Zürich und Frankfurt/M. 1971
- [65] Fritsch, D.: Experimentelle Bestimmung eines "Overall"-Stoffaustauschkoeffizienten an Einzelblasen in einer zweidimensionalen Gas/Feststoff Wirbelschicht Studienarbeit am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Erlangen-Nürnberg, 1978
- [66] Müller, W.: Experimentelle Bestimmung des relativen Blasengasholdup in einer dreidimensionalen Gas/Feststoff Wirbelschicht Studienarbeit am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Erlangen-Nürnberg, 1978
- [67] Latzel, W.: Experimentelle Überprüfung einer Korrelation zur Bestimmung des Blasengasholdup mittels Expansionsmessungen in dreidimensionalen Gas/Feststoff Wirbelschichten Studienarbeit am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Erlangen-Nürnberg, 1979
- [68] Roth, H.: Experimentelle Bestimmung des Stoffaustausches in einer Gas/Feststoff Wirbelschicht großen Durchmessers mit Berücksichtigung der Strömungsmechanik Diplomarbeit am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Erlangen-Nürnberg, 1979
- [69] Bellgardt, D.: Einfluß des Anströmbodens auf den Stoffaustausch in einem Fließbett mit 190 mm Durchmesser Studienarbeit am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Erlangen-Nürnberg, 1979
- [70] Hilligardt, K.: Experimentelle Bestimmung des Abriebes eines mit Eisenoxid imprägnierten Sandes in Laborwirbelschichten mit einem Durchmesser von 100 mm Studienarbeit am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Erlangen-Nürnberg, 1979

- [71] Sitzmann, W.: Bestimmung effektiver Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten des Ozonzerfalls an mit Eisenoxid imprägniertem Sand
Studienarbeit am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Erlangen-Nürnberg, 1979
- [72] Kurtin, M.: Durchführung einer Modellreaktion in der flachen Wirbelschicht zur Bestimmung des Stoffaustauschverhaltens
Diplomarbeit am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Erlangen-Nürnberg, 1980
- [73] Hesse, P.: Experimentelle Untersuchung von Bodenstrahlen in Gas/Feststoff Wirbelschichten
Studienarbeit am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Erlangen-Nürnberg, 1980
- [74] Bellgardt, D.: Untersuchung der Maßstabsvergrößerung von Wirbelschichtreaktoren mit Hilfe einer Modellreaktion
Diplomarbeit am Lehrstuhl für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Erlangen-Nürnberg, 1980

9. Anhang

9.1 Stoffaustausch in der Bodenzone nach Behie und Bergougnou

Bei der Modellierung des Einflusses der Gasverteilung nach Behie und Bergougnou [8, 9] ist der Stoffaustauschkoeffizient zwischen Strahl und Suspension k_j auf die Oberfläche des, als zylinderförmig angenommenen Bodenstrahls $-\pi \cdot d_o \cdot h_o$ - bezogen. Experimente von Basov [40] und Merry [41] zeigen, daß die Strahlgeometrie präziser durch einen Kegelstumpf mit einem halben Strahlöffnungswinkel von $\epsilon = 15^\circ$ angenähert werden kann. Bei Verwendung der, mit dieser Strahlgeometrie (siehe Abschnitt 3.3) berechneten Oberfläche des Einzelstrahls S_j kann nun der Stoffaustauschkoeffizient α_j aus den experimentellen Ergebnissen des Stoffaustausches von Behie und Bergougnou berechnet werden gemäß:

$$\alpha_j = \frac{k_j \cdot \pi \cdot d_o (h_o - x_o)}{S_j} \quad (9.1)$$

Ab der Höhe x_o über der Bohrung findet Stoffaustausch zwischen Strahl und Suspension statt. Die Daten für das folgende Berechnungsbeispiel sind aus Behie et al. [8], Tabelle 1, entnommen:

$$\begin{aligned} k_j &= 1.31 \text{ m/s} \\ d_o &= 0.0064 \text{ m} \\ u_o &= 61 \text{ m/s} \\ x_o &= 0.0406 \text{ m} \\ \bar{d}_p &= 60 \cdot 10^{-6} \text{ m} \\ \rho_f &= 1.23 \text{ kg/m}^3 \\ \rho_s &= 800 \text{ kg/m}^3 \end{aligned}$$

Nach Gl. (3.2) ist die vertikale Strahleindringtiefe für die gegebenen Versuchsbedingungen:

$$h_o = 0.207 \text{ m.}$$

Es folgt für die Strahloberfläche mit Gl. (3.18):

$$S_j = 0.040 \text{ m}^2.$$

Der Stoffaustauschkoeffizient zwischen Strahl und Suspension α_j ist gemäß Gl. (9.1) dieses Abschnittes:

$$\alpha_j = 0.106 \text{ m/s.}$$

Die Berechnung des Stoffaustauschkoeffizienten zwischen Blasenphase und Suspension α nach der von Werther entwickelten Korrelation, Gl. (2.18), ergibt:

$$\alpha = 0.012 \text{ m/s}$$

für poröse Katalysatoren als Wirbelgut bei einer Leerrohrgeschwindigkeit von $u = 0.1 \text{ m/s}$, d.h. die Interpretation der Stoffaustauschmessungen der Bodenstrahlen von Behie und Bergougnou liefert einen, gegenüber dem Blasenbett um den Faktor zehn größeren Stoffaustauschkoeffizienten.

Im Gegensatz zu den Ergebnissen von Behie und Bergougnou zeigen die von Piccinini, Grace und Mathur [61] mit Hilfe einer chemischen Reaktion durchgeführten Stoffaustauschmessungen am Einzelstrahl deutlich geringere Stoffaustauschwerte zwischen Strahl und Suspension.

9.2 Lösung des Differentialgleichungssystems für eine Stufenfunktion als Eingangssignal

Für die Lösung des partiellen Differentialgleichungssystems Gl. (4.1-2), bei Verwendung einer Stufenfunktion als Eingangssignal, gelten nach Danckwerts [62] folgende Randbedingungen:

$$\text{für } \theta \leq 0 \quad \text{gilt} \quad C_b = C_d = C_0$$

$$\text{für } \theta > 0$$

$$\text{und } \zeta = 0 \quad \text{gilt} \quad \frac{dC_d}{d\zeta} = \frac{u_{mf} \cdot H \cdot C_d}{D_{ax} (1 - \epsilon_{bj}) \epsilon_{mf}}$$

$$\text{für } \theta > 0$$

$$\text{und } \zeta = 1 \quad \text{gilt} \quad \frac{dC_d}{d\zeta} = 0.$$

Für den Fall, daß Suspensionsgasströmung und Axialdispersion der Suspensionsphase vernachlässigbar sind, kann die von Anzelius [44] für das Problem des Wärmeübergangs zwischen Feststoff und Fluid in einem durchströmten Festbett gegebene Lösung - mit Besselfunktion erster Art und nullter Ordnung - verwendet werden:

$$\frac{C}{C_0} = 1 - \exp \left[- \frac{N_\alpha \left(\theta - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon} \right)}{\left(1 - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon} \right)} \right] \int_{s=0}^{N_\alpha} \exp [-s] J_0 \left(2i \sqrt{\frac{N_\alpha \left(\theta - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon} \right) \cdot s}{\left(1 - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon} \right)}} \right) ds \quad (9.2)$$

May verwendet zur Auswertung der Stoffaustauschmessungen eine numerische Lösung des partiellen Differentialgleichungssystems. Da jedoch der direkte Vergleich - experimentell bestimmte und berechnete Antwortfunktion - wie Abb. 9.1 zeigt, bedingt durch die Strömungsmechanik der Wirbelschicht schwer möglich ist, erfolgte bei May die Auswertung über einen Vergleich der Steigung

von gemessener und berechneter Antwortfunktion für den Konzentrationsbereich von $0.01 < C/C_0 < 0.1$.

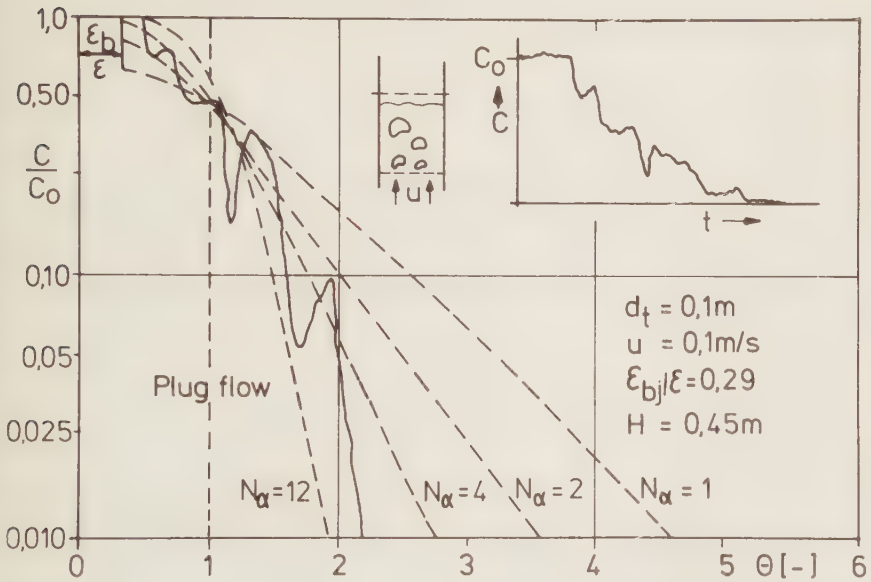


Abb. 9.1: Vergleich einer experimentell, für einen Stufenimpuls als Eingangssignal, bestimmten Antwortfunktion mit gemäß Gl.(9.2) für verschiedene N_α berechnete Kurven

9.3 Lösung des Differentialgleichungssystems für einen Dirac-Impuls als Eingangssignal

Für die Lösung des partiellen Differentialgleichungssystems, Gln.(4.1 - 2) gelten folgende Randbedingungen:

$$\begin{aligned} \text{für } \theta &= 0: & C_b &= C_d = 0 \\ \zeta &= 0: & \partial C_d / \partial \zeta &= 0; \\ & & C_b &= \delta(t) = \text{Impulsfunktion} \\ \zeta &= 1: & \partial C_d / \partial \zeta &= 0. \end{aligned}$$

Die Konzentrationen der einzelnen Phasen werden mit der Impulsfunktion $\delta(t)$ normiert, so daß gilt:

$$\int_0^{\infty} \delta(t) dt = 1.$$

Die Antwortfunktion am Reaktorausgang entspricht damit der Verweilzeitverteilungsfunktion. Durch Anwendung der Laplace Transformation wird das partielle Differentialgleichungssystem in ein lineares Differentialgleichungssystem umgewandelt mit:

$$\begin{aligned} \bar{C}_b &= \int_0^{\infty} e^{-p\theta} C_b d\theta \\ \bar{C}_d &= \int_0^{\infty} e^{-p\theta} C_d d\theta \end{aligned}$$

Die Bilanzgleichungen für Blasenphase und Suspensionsphase lauten nun:

$$\begin{aligned} \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon} p \bar{C}_b + \frac{d\bar{C}_b}{d\zeta} + N_{\alpha} (\bar{C}_b - \bar{C}_d) &= 0 \\ (1 - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon}) p \bar{C}_d - \frac{1}{N_E} \frac{d^2 \bar{C}_d}{d\zeta^2} + N_{\alpha} (\bar{C}_d - \bar{C}_b) &= 0 \end{aligned}$$

mit den Randbedingungen

$$\text{für } \zeta = 0: \quad \bar{\zeta}_b = 1$$

$$\frac{d\bar{\zeta}_d}{d\zeta} = 0$$

$$\zeta = 1: \quad \frac{d\bar{\zeta}_d}{d\zeta} = 0.$$

Als Lösung werden die einzelnen Momente der Antwortfunktion erhalten, ohne die Funktion selbst kennen zu müssen [31].

Für die Auswertung der Verweilzeitverteilungsversuche wird die mit der mittleren Verweilzeit normierte Varianz der Antwortfunktion benötigt (Gl. (4.3))

$$\sigma^2 = \frac{2}{N_\alpha} \left(1 - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon}\right)^2 + \frac{2}{N_E} + \frac{2q}{N_E^2} \frac{\left[\exp \frac{N_\alpha(q-1)}{2} - 1 \right] \left[\exp \frac{N_\alpha(q+1)}{2} - 1 \right]}{\exp \left[\frac{N_\alpha(q-1)}{2} \right] - \exp \left[-\frac{N_\alpha(q+1)}{2} \right]} \quad (9.3)$$

$$\text{mit } q = 1 + 4 \frac{N_E}{N_\alpha}$$

Es ergeben sich zwei Grenzfälle dieser Lösung [32]:

1. Der Stoffaustausch ist sehr groß

$$\sigma^2 = \frac{2}{N_E} - \frac{2}{N_E^2} (1 - e^{-N_E}). \quad (9.4)$$

Dies entspricht der Anzahl ideal vermischter Rührkessel N einer Rührkesselkaskade nach v. d. Laan [45]

$$\frac{1}{N} = \frac{2}{N_E} - \frac{2}{N_E^2} (1 - e^{-N_E}). \quad (9.5)$$

2. Der Einfluß der Axialdispersion der Suspensionsphase wird vernachlässigbar gegenüber dem Stoffaustauschwiderstand zwischen den Phasen:

$$\sigma^2 = \frac{2}{N_\alpha} \left(1 - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon}\right)^2 \quad (9.6)$$

9.4 Fehler bei Verwendung der Näherungslösung für die Varianz des Antwortsignals

Die strenge Lösung des Differentialgleichungssystems für einen Dirac-Impuls als Eingangssignal ergibt für die normierte Varianz des Antwortsignals Gl. (4.3):

$$\sigma^2 = \frac{2}{N_\alpha} \left(1 - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon}\right)^2 + \text{fkt}(N_E, N_\alpha) \quad (9.7)$$

Bei Vernachlässigung des Einflusses der Axialdispersion in der Suspensionsphase gilt [31]:

$$\sigma^2 = \frac{2}{N_\alpha} \left(1 - \frac{\epsilon_{bj}}{\epsilon}\right)^2 \quad (9.8)$$

Im folgenden wird nun anhand der Versuchsbedingungen der in Kap. 4 beschriebenen Verweilzeitverteilungsmessungen die Fehlerabweichung für σ^2 bei Verwendung der Näherungslösung berechnet. Die in dieser Arbeit untersuchten Wirbelschichten besitzen jeweils Schütthöhen kleiner 1 m, so daß gilt:

1. Die Anzahl Stoffaustauscheinheiten N_α ist kleiner eins.
2. Der auf den Gesamtgasholdup bezogene Volumenanteil des Gases der feststofffreien Phase ϵ_{bj}/ϵ liegt zwischen 0.07 und 0.26.
3. Nach in der Literatur [32] vorliegenden Angaben gilt für die Anzahl Dispersionseinheiten der Suspensionsphase $N_E > 2 \dots 3$.

Die Ergebnisse der relativen Fehlerabweichung für die Näherungslösung sind in Abb. 9.2 für $N_\alpha \leq 1$; $\epsilon_{bj}/\epsilon = 0.1$ und für $2 \leq N_E \leq 200$ aufgetragen.

Wie diese Darstellung zeigt, ist unter den gegebenen Versuchsbedingungen die Näherungslösung als hinreichend genau für die Auswertung der Verweilzeitverteilungsmessungen anzusehen.

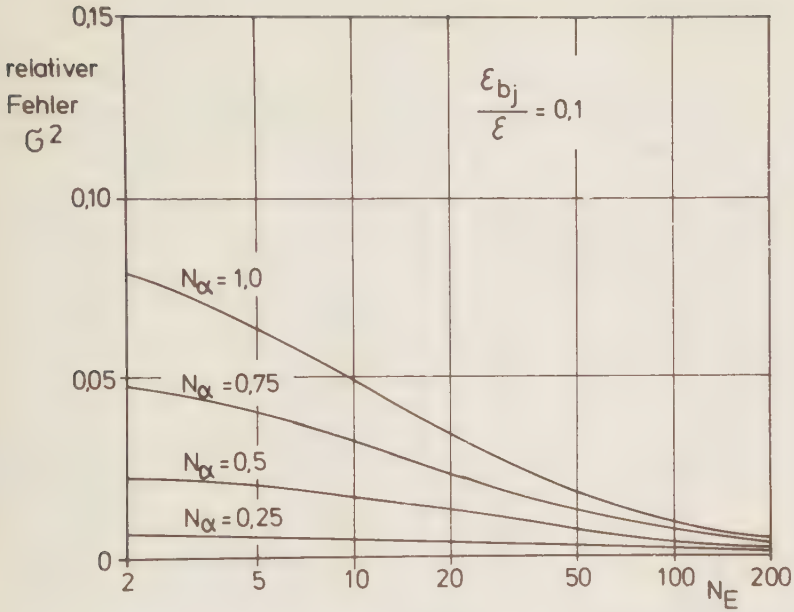


Abb. 9.2: Fehlerabweichung bei Berechnung von σ^2 mit Näherungslösung (Gl.9.8) gegenüber der strengen Lösung (Gl.9.7), aufgetragen über N_E der Anzahl Dispersionseinheiten mit N_α der Anzahl Stoffaustauscheinheiten als Parameter.

9.5 Charakterisierung des Versuchsgutes

Als Wirbelgut wurde Quarzsand mit einer Pyknometerdichte von $\rho_s = 2630 \text{ kg/m}^3$ verwendet. Die Siebanalyse (Abb. 9.3) ergibt einen Sauterdurchmesser (surface mean diameter) von $\bar{d}_p = 108 \mu\text{m}$.

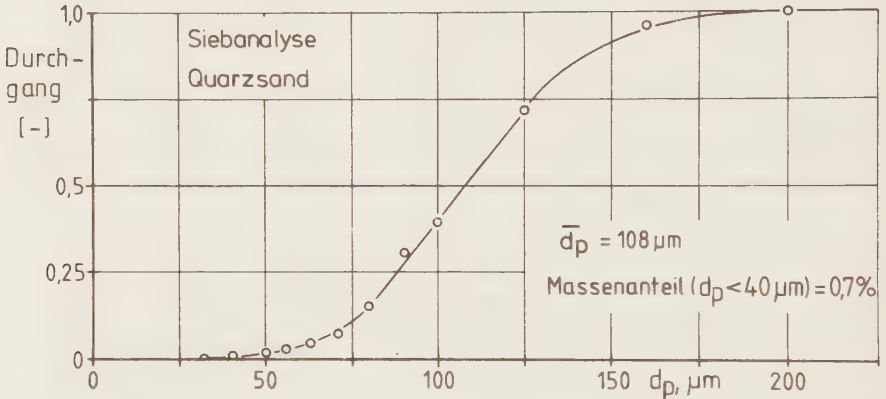


Abb. 9.3: Siebanalyse des Quarzsandes

Fluidisationsversuche an einer Laborwirbelschicht mit $d_t = 0.1 \text{ m}$ Durchmesser ergeben eine Minimalfluidisationsgeschwindigkeit von $u_{mf} = 0.016 \text{ m/s}$ und eine Schüttungsporosität bei Minimalfluidisation von $\epsilon_{mf} = 0.58$.

In Abb. 9.4 ist der Druckverlust von Schüttung und Anströmboden Δp , sowie die Höhe der expandierten Wirbelschicht H über der Leerrohrgeschwindigkeit u aufgetragen und daraus Porosität ϵ_{mf} und Gasgeschwindigkeit u_{mf} bei Minimalfluidisation bestimmt.

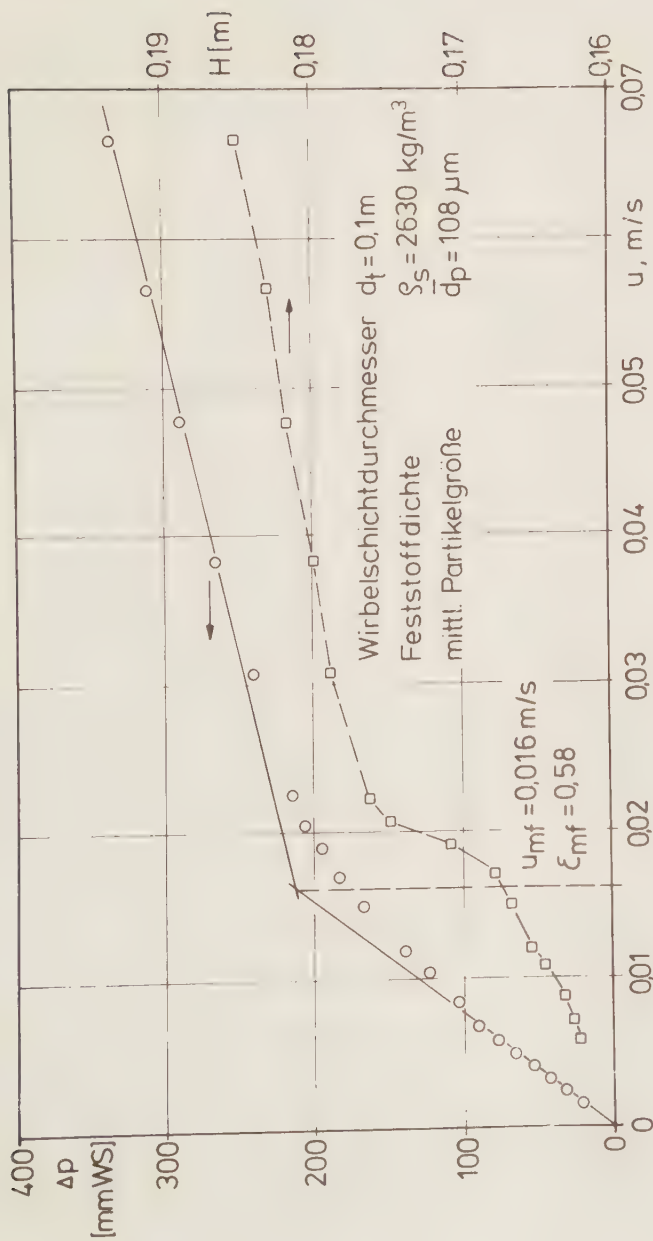


Abb. 9.4: Bestimmung von Porosität und Leerrohrgeschwindigkeit bei Minimalfluidisation

9.6 Berechnung der Kapillarverteilung des Probenahmesystems für Verweilzeitverteilungsmessungen im Wirbelschichtreaktor

Am Beispiel der in Abb. 9.5 gezeigten Verteilung des flächenbezogenen Blasen-
gasstromes $\dot{V}_b$ bei Anströmung mit poröser Platte wird die für eine repräsentative
Probenahme über den Wirbelschichtquerschnitt benötigte Kapillarverteilung
berechnet.

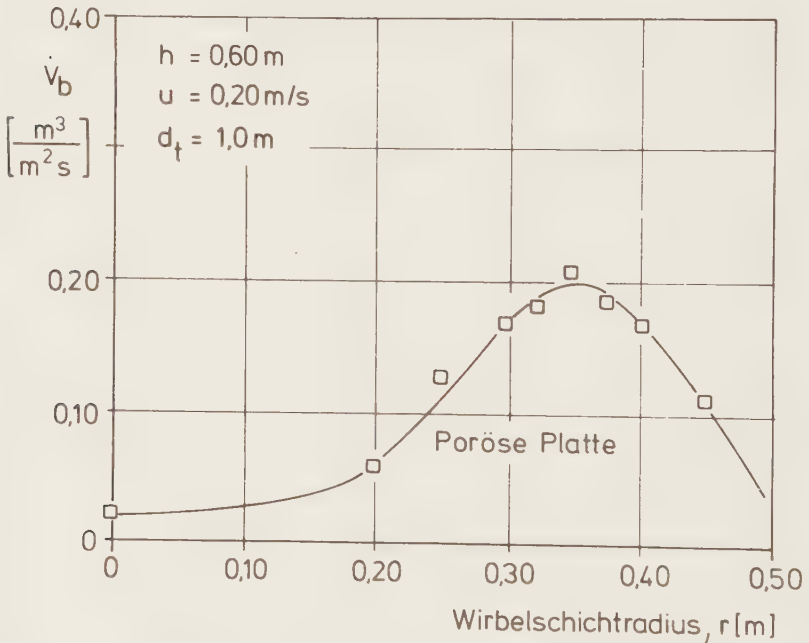


Abb. 9.5: Verteilung des flächenbezogenen Blasen-
gasstromes $\dot{V}_b$ über dem Radius der Wirbelschicht in der Höhe h

Durch Integration des flächenbezogenen Blasen-
gasstromes $\dot{V}_b$ über die Wirbel-
schichtfläche läßt sich der gesamte in Blasen transportierte Gasstrom be-
rechnen. Die Integration des flächenbezogenen Blasen-
gasstroms, von der Wirbel-
schichtachse bis zum Wirbelschichtradius r und Division durch den gesamten in
Blasen transportierten Gasstrom, ergibt die in Abb. 9.6 gezeigte Anteilsummen-
kurve des Blasen-
gasstroms als Funktion des Wirbelschichtradius.

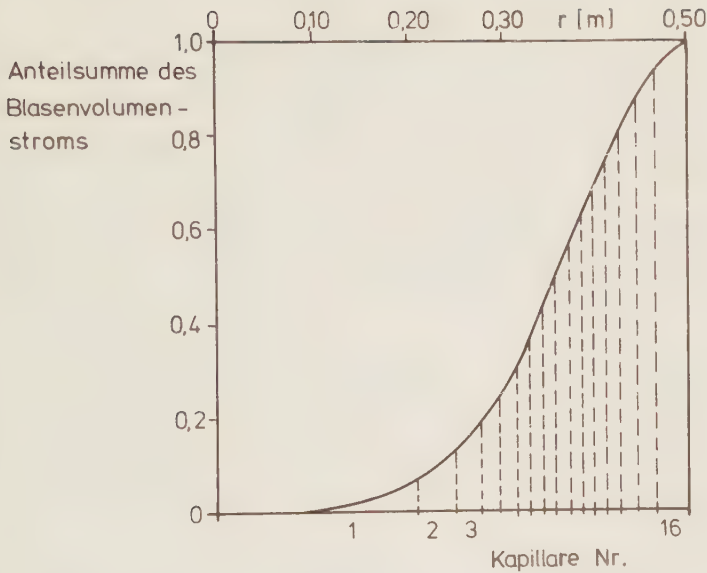


Abb. 9.6: Berechnung der Anordnung der Einzelkapillaren des Gebersystems über den Radius der Wirbelschicht

Die Lage der n_k Einzelkapillaren über den Wirbelschichtquerschnitt ergibt sich durch Aufteilung der Anteilsummenkurve des Blasengasstroms in n_k gleichgroße Abschnitte. Jeder dieser Abschnitte gibt die Lage einer Einzelkapillare an.

9.7 Abschätzung des Diffusionseinflusses auf die Bestimmung der reaktionskinetischen Parameter im Festbettreaktor

Bei einer heterogen katalytischen Reaktion müssen die Reaktanden aus dem strömenden Medium durch eine, das Katalysatorkorn umgebende, Grenzschicht hindurch an die Oberfläche des Katalysatorkorns mittels Filmdiffusion transportiert werden. Handelt es sich bei dem Katalysator um einen porösen Feststoff - bei dem sich die aktiven Zentren hauptsächlich im Innern der Partikel befinden - so muß der Reaktand durch Porendiffusion an die katalytisch wirksamen Stellen gebracht werden. Die beschriebenen Transportvorgänge können nun mit Geschwindigkeiten ablaufen, die größer oder kleiner sind, als die Geschwindigkeit der chemischen Reaktion am Katalysatorkorn [55], d.h. die chemische Reaktion kann stofftransportbehindert sein. Im folgenden wird anhand von Versuchsergebnissen, die an dem in Kap. 5 beschriebenen Festbettreaktor gewonnen wurden, eine Abschätzung vorgenommen, ob sich Filmdiffusion und Porendiffusion hemmend auf die Geschwindigkeit der katalytischen Reaktion auswirken.

Reaktionstemperatur $T = 303 \text{ K}$

Schütthöhe $H_m = 0.063 \text{ m}$

Porosität des Festbettes $\epsilon_m = 0.53$

Gasgeschwindigkeit $u = 0.019 \text{ m/s}$

Eingangskonzentration $C_0 = 21.4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ Ozon} / \text{m}^3 \text{ Gas}$

Ozonkonzentration am Reaktorende $C = 15.8 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ Ozon} / \text{m}^3 \text{ Gas}$

Partikelgröße $\bar{d}_p = 108 \text{ }\mu\text{m}$

1. Filmdiffusion

Als Abschätzung dafür, daß die Filmdiffusion nicht reaktionshemmend wirkt, wird angesetzt [56]:

$$\frac{\bar{C} - \bar{C}_s}{\bar{C}} < 0.01 \quad (9.9)$$

mit $\bar{C}$ = mittlere Reaktandenkonzentration im strömenden Medium

$\bar{C}_s$ = mittlere Reaktandenkonzentration an Katalysatoroberfläche

wobei für kugelige Partikeln die Korrelation nach Brauer [56]

$$\bar{C} - \bar{C}_s = \frac{\epsilon_m}{(1-\epsilon_m)(\epsilon_m+0.12)} \cdot \frac{\bar{d}_p}{\nu} \cdot \frac{r_{\text{eff}}}{0_v} \cdot \frac{Sc^{2/3}}{f(Re^*)} \quad (9.10)$$

zur Berechnung der Konzentrationsdifferenz im Film verwendet wird.

Die auf das Festbettvolumen bezogene Feststoffoberfläche ist:

$$0_v = \frac{6(1-\epsilon_m)}{\bar{d}_p} \quad (9.11)$$

für die Schmidtzahl Sc gilt:

$$Sc = \frac{\nu}{D_{\text{Ozon,Luft}}} \quad (9.12)$$

die modifizierte Reynoldszahl Re^* ist definiert mit:

$$Re^* = \frac{u \bar{d}_p}{(1-\epsilon_m)\nu} \quad (9.13)$$

Die Funktion $f(Re^*)$ in Gl.(9.10) ist gegeben mit:

$$f(Re^*) = Re^* \left[\frac{3.72}{Re^{*2/3}} + \frac{1.06}{30+Re^{*1/3}} \right] \quad (9.14)$$

Für den, für die gewählte Versuchsanordnung gegebenen, geringen Umsatz kann die effektive Reaktionsgeschwindigkeit

$$\text{mit } r_{\text{eff}} = \frac{C_o - C}{\tau_m} \quad (9.15)$$

für den Differentialreaktor eingesetzt werden.

τ_m ist die Verweilzeit des Reaktanden im Festbettreaktor.

Einsetzen der Versuchsdaten in Gl.(9.10) ergibt:

$$\bar{C} - \bar{C}_s = 2.697 \cdot 10^{-10} \text{ m}^3 \text{ Ozon} / \text{m}^3 \text{ Gas}$$

$$\text{mit } \bar{C} \approx \frac{C_0 - C}{2} = 18.6 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ Ozon} / \text{m}^3 \text{ Gas}$$

$$\text{folgt } \frac{\bar{C} - \bar{C}_s}{\bar{C}} = 1.45 \cdot 10^{-5},$$

d.h. die Bedingung von Gl.(9.9) ist erfüllt und deshalb keine Reaktionshemmung durch Filmdiffusion zu erwarten.

2. Porendiffusion

Unter der Voraussetzung, daß der Einfluß der Filmdiffusion vernachlässigbar ist, gilt für die Reaktandenkonzentration an der Kornoberfläche $C_s \approx C$ des strömenden Mediums. Für die Beschreibung des Einflusses der Porendiffusion auf die heterogen katalytische Reaktion ist der Wirkungsgrad η mit

$$\eta = \frac{\text{mittlere effektive Reaktionsgeschwindigkeit im Korn}}{\text{Reaktionsgeschwindigkeit zu Oberflächenbedingungen}}$$

definiert und als Funktion des Thiele-Moduls gegeben [57]. Der Thiele-Modul ist definiert als das Verhältnis von wahrer Reaktionsgeschwindigkeitskonstante zu Diffusionskoeffizienten im Korn. Da der Thiele-Modul wegen unbekannter wahrer Reaktionsgeschwindigkeitskonstante nicht berechnet werden kann, wird für eine irreversible Reaktion erster Ordnung mit Annahme kugelförmiger Katalysatorpartikel im isothermen Fall das Prater-Weisz-Kriterium zur Abschätzung der Porendiffusion herangezogen [58].

Für den Fall, daß keine Hemmung durch Porendiffusion auftritt, gilt:

$$\phi_g = \frac{r_{\text{eff}} \cdot \bar{d}_p^2}{4 \cdot D_{e,s} \cdot \bar{C}_s} < 1 \quad (9.16)$$

mit ϕ_g dem Weisz-Modul und $D_{e,s}$ dem effektiven Diffusionskoeffizienten im Korn

$$D_{e,s} = \frac{D \cdot \epsilon_p}{\tau_F} \quad (9.17)$$

Die Kornporosität ϵ_p wird mit $\epsilon_p \approx 0.5$, der Labyrinthfaktor τ_F mit $\tau_F \approx 3$ angenommen.

Mit Gl.(9.15) für den Differentialreaktor und Gl.(9.17) folgt aus Gl.(9.16) folgende Bedingung für die Verweilzeit τ_m im Festbettreaktor:

$$\tau_m > \frac{d_p^2 \cdot \tau_F}{2 \cdot D \cdot \epsilon_p}$$

Einsetzen der Versuchsdaten liefert die Bedingung:

$$\tau_m > 1.8 \cdot 10^{-3} \text{ s}$$

Diese Bedingung ist für den gegebenen Fall sicher erfüllt, so daß keine Reaktionshemmung durch Porendiffusion zu erwarten ist.

9.8 Katalysatorherstellung und Abriebsversuch

Der für die Ozonabbaureaktion benötigte Katalysator wird durch Imprägnierung des bereits bei Durchführung der Verweilzeitverteilungsmessungen (Kap. 4) verwendeten Sandes mit Eisenoxid hergestellt. Die Hälfte der etwa 400 kg der Katalysatorschüttung wurden durch Tauchen des Sandes in Eisennitratlösung und Rösten bei über 623°K , wobei das Eisennitrat in Eisenoxid umgewandelt wird, präpariert. Der Rest ist unpräparierter Sand.

Wie ein Vergleich ohne und mit Imprägnierung am Rasterelektronenmikroskop (Abb. 9.7 und Abb. 9.8) zeigt, haftet ein Großteil des Eisenoxids in feinen Partikeln ($d_p < 1\text{ }\mu\text{m}$) an der Sandoberfläche.



Abb. 9.7: Oberfläche des Sandes bei 5000-facher Vergrößerung

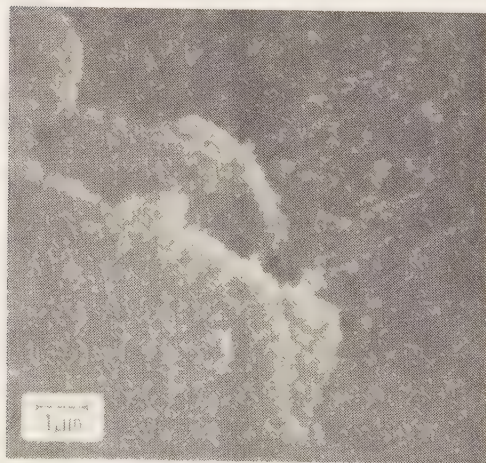


Abb. 9.8: Oberfläche des imprägnierten Sandes bei 10 000-facher Vergrößerung

Dies erklärt den in Abb. 9.9 gezeigten starken Feingutaustrag in Abhängigkeit von der Zeit für die ersten Betriebsstunden des Katalysators, der in einer Laborwirbelschicht mit 0.1 m Durchmesser bestimmt wurde.

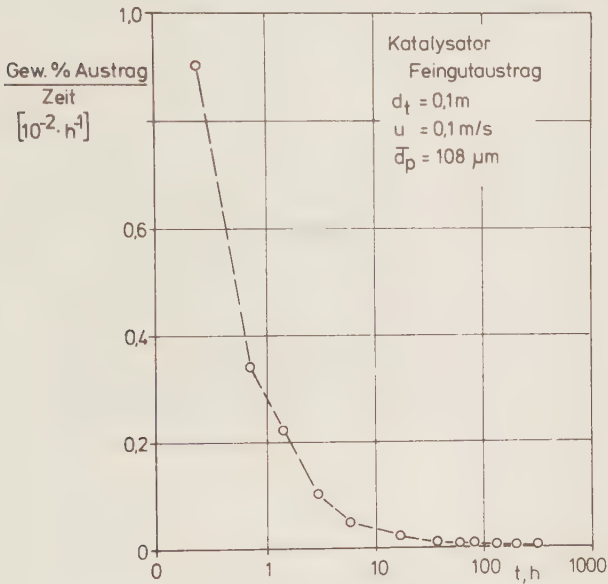


Abb. 9.9: Auftragung des relativen Austrags aus einer Wirbelschicht mit $d_t = 0.1\text{ m}$ Durchmesser als Funktion der Austragsdauer

Wie bereits in Abschnitt 5.3.2.4 beschrieben, nimmt in gleicher Weise die Katalysatoraktivität im Wirbelschichtreaktor in den ersten Betriebsstunden rapide ab. Dies läßt den Schluß zu, daß die in dieser Untersuchung vorgefundene Desaktivierung des Katalysators im Wirbelschichtreaktor vorwiegend durch mechanischen Abrieb bewirkt ist.

9.9 Ergebnisse der Verweilzeitverteilungsmessungen

Tab. I

Gasverteiler: poröse Platte

Wirbelschichtdurchmesser $d_t = 1,0\text{m}$

Schichthöhe bei Minimalfluidisation $H_{mf} = 0,43\text{m}$

$u[\text{m/s}]$	$H[\text{m}]$	$\varepsilon_{bj}/\varepsilon [-]$	$a [\text{m}^{-1}]$	$\sigma^2 [-]$	$\alpha [\text{m/s}]$
.10	.46	.0919	20.93	1.6700	.008540
.15	.48	.1392	27.24	1.8101	.008390
.20	.49	.1802	32.41	1.9288	.008073
.25	.50	.2147	36.68	1.7469	.009008
.30	.51	.2473	40.32	1.8303	.008550

Tab. II

Gasverteiler: poröse Platte

Wirbelschichtdurchmesser $d_t = 1,0\text{m}$

Schichthöhe bei Minimalfluidisation $H_{mf} = 0,59\text{m}$

$u[\text{m/s}]$	$H[\text{m}]$	$\varepsilon_{bj}/\varepsilon [-]$	$a [\text{m}^{-1}]$	$\sigma^2 [-]$	$\alpha [\text{m/s}]$
.10	.64	.0875	16.37	1.6086	.008289
.15	.66	.1272	21.46	1.5230	.009423
.20	.68	.1633	25.32	1.7633	.008443
.25	.70	.1984	28.43	1.5673	.009578
.30	.72	.2284	31.01	1.5813	.009578

Tab. III

Gasverteiler: poröse Platte

Wirbelschichtdurchmesser $d_t = 1,0\text{m}$

Schichthöhe bei Minimalfluidisation $H_{mf} = 0,69\text{m}$

$u[\text{m/s}]$	$H[\text{m}]$	$\varepsilon_{bj}/\varepsilon [-]$	$a [\text{m}^{-1}]$	$\sigma^2 [-]$	$\alpha [\text{m/s}]$
.10	.73	.0848	14.77	1.5058	.008667
.15	.75	.1244	19.41	1.4525	.009717
.20	.77	.1599	22.95	1.6420	.008951
.25	.80	.1899	25.57	1.5208	.009872
.30	.82	.2194	27.95	1.5799	.009558

Tab. IV

Gasverteiler: Lochboden

Wirbelschichtdurchmesser $d_t = 1,0\text{m}$

Schichthöhe bei Minimalfluidisation $H_{mf} = 0,32\text{m}$

$u [\text{m/s}]$	$H [\text{m}]$	$\varepsilon_{bj} / \varepsilon [-]$	$a [\text{m}^{-1}]$	$\sigma^2 [-]$	$\alpha [\text{m/s}]$
.10	.33	.0831	7.75	7.1129	.007732
.15	.35	.1168	9.474	6.351	.009651
.20	.37	.1485	10.93	6.878	.009592
.25	.38	.1776	12.14	7.438	.009224
.30	.39	.2048	13.18	8.4996	.008221

Tab. V

Gasverteiler: Lochboden

Wirbelschichtdurchmesser $d_t = 1,0\text{m}$

Schichthöhe bei Minimalfluidisation $H_{mf} = 0,52\text{m}$

$u [\text{m/s}]$	$H [\text{m}]$	$\varepsilon_{bj} / \varepsilon [-]$	$a [\text{m}^{-1}]$	$\sigma^2 [-]$	$\alpha [\text{m/s}]$
.10	.54	.0776	6.29	5.5918	.007526
.15	.56	.1111	7.90	5.3190	.008997
.20	.58	.1409	9.14	5.0850	.009980
.25	.60	.1680	10.15	5.4335	.009790
.30	.61	.1951	11.09	6.2635	.008725

Tab. VI

Gasverteiler: Lochboden

Wirbelschichtdurchmesser $d_t = 1,0\text{m}$

Schichthöhe bei Minimalfluidisation $H_{mf} = 0,60\text{m}$

$u [\text{m/s}]$	$H [\text{m}]$	$\varepsilon_{bj} / \varepsilon [-]$	$a [\text{m}^{-1}]$	$\sigma^2 [-]$	$\alpha [\text{m/s}]$
.10	.67	.0753	5.80	5.1866	.007581
.15	.69	.1085	7.33	4.6238	.009653
.20	.71	.1381	8.51	5.1239	.009362
.25	.73	.1652	9.47	5.0688	.009816
.30	.75	.1921	10.37	5.6949	.009029

Tab. VII

Gasverteiler: Schraubenboden

Wirbelschichtdurchmesser $d_t = 1,0\text{m}$

Schichthöhe bei Minimalfluidisation $H_{mf} = 0,37\text{m}$

$u[\text{m/s}]$	$H[\text{m}]$	$\varepsilon_{bj}/\varepsilon [-]$	$a [\text{m}^{-1}]$	$\sigma^2 [-]$	$\alpha [\text{m/s}]$
.10	.39	.08634	7.98	5.1416	.008770
.15	.40	.1341	10.76	5.3338	.008753
.20	.42	.1810	13.13	5.6397	.007937
.25	.44	.2302	15.33	4.8145	.008540
.28	.45	.2621	16.64	4.3535	.008819

Tab. VIII

Gasverteiler: Schraubenboden

Wirbelschichtdurchmesser $d_t = 1,0\text{m}$

Schichthöhe bei Minimalfluidisation $H_{mf} = 0,48\text{m}$

$u[\text{m/s}]$	$H[\text{m}]$	$\varepsilon_{bj}/\varepsilon [-]$	$a [\text{m}^{-1}]$	$\sigma^2 [-]$	$\alpha [\text{m/s}]$
.10	.50	.08441	7.68	4.9270	.007440
.15	.52	.1230	9.31	5.2139	.008166
.20	.54	.1677	11.33	4.7598	.008798
.25	.56	.2102	13.23	4.0317	.009773
.28	.57	.2388	14.35	4.2160	.008871

Tab. IX

Gasverteiler: Schraubenboden

Wirbelschichtdurchmesser $d_t = 1,0\text{m}$

Schichthöhe bei Minimalfluidisation $H_{mf} = 0,60\text{m}$

$u[\text{m/s}]$	$H[\text{m}]$	$\varepsilon_{bj}/\varepsilon [-]$	$a [\text{m}^{-1}]$	$\sigma^2 [-]$	$\alpha [\text{m/s}]$
.10	.63	.07813	6.13	4.8132	.007681
.15	.65	.1183	8.15	4.1270	.009529
.20	.67	.1587	9.92	4.5490	.008719
.25	.69	.2006	11.57	3.9824	.009408
.28	.71	.2242	12.42	3.6229	.009870

Tab. X

Gasverteiler: Düsenboden

Wirbelschichtdurchmesser $d_t = 1,0\text{m}$

Schichthöhe bei Minimalfluidisation $H_{mf} = 0,37\text{m}$

$u[\text{m/s}]$	$H[\text{m}]$	$\varepsilon_{bj}/\varepsilon[-]$	$a[\text{m}^{-1}]$	$\sigma^2[-]$	$\alpha[\text{m/s}]$
.10	.39	.0806	7.42	5.6744	.008649
.15	.40	.1172	9.34	6.1128	.009146
.20	.41	.1480	10.79	6.2016	.009734
.25	.43	.1935	13.76	5.8831	.008745
.30	.45	.2269	15.26	4.9961	.009895

Tab. XI

Gasverteiler: Düsenboden

Wirbelschichtdurchmesser $d_t = 1,0\text{m}$

Schichthöhe bei Minimalfluidisation $H_{mf} = 0,43$

$u[\text{m/s}]$	$H[\text{m}]$	$\varepsilon_{bj}/\varepsilon[-]$	$a[\text{m}^{-1}]$	$\sigma^2[-]$	$\alpha[\text{m/s}]$
.10	.45	.07932	7.02	5.6380	.007900
.15	.46	.1150	8.76	5.7255	.009108
.20	.48	.1449	10.03	6.4850	.008618
.25	.50	.1874	12.68	5.8603	.008318
.30	.51	.2221	14.23	6.0108	.007897

Tab. XII

Gasverteiler: Düsenboden

Wirbelschichtdurchmesser $d_t = 1,0\text{m}$

Schichthöhe bei Minimalfluidisation $H_{mf} = 0,53\text{m}$

$u [\text{m/s}]$	$H [\text{m}]$	$\varepsilon_{bj} / \varepsilon [-]$	$a [\text{m}^{-1}]$	$\sigma^2 [-]$	$\alpha [\text{m/s}]$
.10	.56	.0759	6.21	4.6520	.008860
.15	.57	.1110	7.86	5.3638	.008810
.20	.59	.1406	9.04	5.7025	.008936
.25	.61	.1882	11.32	5.3638	.008520
.30	.62	.2135	12.69	5.5182	.008193

Lebenslauf

=====

- 1950 am 25. Dezember in Prien/Chiemsee geboren als Sohn des Hausmeisters Ludwig Bauer und seiner Ehefrau Anna Bauer, geb. Hien
- 1957 - 1961 Besuch der Grundschule in Steinach und Prien
- 1961 - 1970 Besuch des Ludwig-Thoma-Gymnasiums
(mathematisch-naturwissenschaftlicher Zweig) in Prien
- 1970 Reifeprüfung am 20. Juni
- 1970 - 1975 Studium des Chemie-Ingenieur-Wesens, Abschlußrichtung
Verfahrenstechnik an der Universität Erlangen-Nürnberg
- 1975 19. Dezember, Diplomhauptprüfung als
Chemieingenieur der Studienrichtung Verfahrenstechnik
- seit 1.1.1976 zunächst als Verwalter der Dienstgeschäfte eines wissen-
schaftlichen Assistenten,
ab 1.11.1977 als wissenschaftlicher Assistent am Lehrstuhl
für Mechanische Verfahrenstechnik der Universität Erlangen-
Nürnberg bei Prof. Dr.-Ing. O. Molerus

